

Spontane und stimulierte Emission von
(Al,In,Ga)N-Halbleitern –
Untersuchungen von konventionellen Heterostrukturen
und einer neuartigen „feldfreien“ Struktur

D I S S E R T A T I O N

zur Erlangung des akademischen Grades
doctor rerum naturalium
(Dr. rer. nat.)
im Fach Physik

eingereicht an der
Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät I
Humboldt-Universität zu Berlin

von
Herr Dipl.-Ing. Björn Rau
geboren am 17.06.1972 in Berlin

Präsident der Humboldt-Universität zu Berlin:
Prof. Dr. Jürgen Mlynek

Dekan der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät I:
Prof. Dr. Michael Linscheid

Gutachter:

1. Prof. Dr. Fritz Henneberger
2. Prof. Dr. Klaus H. Ploog
3. Prof. Dr. Frank Fink

eingereicht am:	6. September 2002
Tag der mündlichen Prüfung:	19. Februar 2003

Abstract

In this thesis, the optical properties of molecular beam epitaxy grown hexagonal group-III nitride heterostructures are studied. The photoluminescence (PL) characteristics of InGaN/GaN and GaN/AlGaN multiple quantum well structures are investigated by time-integrated and time-resolved measurements. The analyzed specimens differ in the width of the quantum wells and barriers (InGaN) and in the crystallographic orientation (AlGaN), respectively.

As a result of the large characteristic electrostatic fields, conventional [0001]-oriented heterostructures show a reduced transition energy and longer lifetimes with increasing well width and higher Indium content in the wells. The observed impact of the Quantum Confined Stark Effect (QCSE) on these quantities is quantitatively shown in model calculations.

In this work, a first extensive optical characterization of a novel $[1\bar{1}00]$ -oriented GaN heterostructure grown on γ -LiAlO₂ is presented. For comparison, an identically designed [0001]-oriented structure on SiC is discussed. The $(1\bar{1}00)$ -grown specimen is free of electrostatic fields along the growth direction and shows a significant different behavior than conventional [0001]-oriented nitrides with internal fields of several MV/cm. The existing flat band conditions are confirmed by the spectral position of the PL at low excitation densities. Due to the non-existing QCSE at this specimen a significantly reduced lifetime is observed.

A strong polarization of the PL is observed for the $[1\bar{1}00]$ -oriented sample, following the selection rules for hexagonal GaN. The small deviation of the degree of polarization from unity, which is expected in bulk GaN, is attributed to the quantum confinement in the heterostructures.

One main topic of this thesis is the analysis of the recombination mechanisms of the specimens depending on the induced carrier density. The carrier density is varied from very low up to densities above the mott density. A screening of the electrostatic fields is observed with increasing carrier density.

It is shown, that an InGaN/GaN heterostructure with a well width of 3.1 nm not only is influenced by internal piezoelectric fields but also the localization of excitons at stoichiometric inhomogeneities in the quantum well is playing an important role for the recombination dynamics of the structure. This can be seen in the dependence of the decay process on the starting conditions. No general correlation is existing between lifetime and carrier density.

Time-resolved PL measurements on InGaN/GaN heterostructures show a reduced lifetime due to an increased overlap of the electron and hole wave functions as a result of the increased screening at increasing carrier densities. During the recombination process

the screening decreases again and the lifetime is changed with time. Simultaneously the transition energy of the PL maximum is reduced by the less screened QCSE.

A distinct dependence of the time-integrated PL spectra on the excitation density was also found. While there are no compensation effects expected at the $(1\bar{1}00)$ structure, which is free of electrostatic fields, the results for the conventional specimens point to an effect which influences the carrier density essentially.

The dependence of the PL intensity on the carrier density points to an additional process, which comes into play at a special excitation density. This process reduces the carrier density but is invisible in the PL spectra. As an explanation we assume, that light of stimulated emission is absorbed either in the substrate or in the buffer layer.

The transition energy of the InGaN structures increases with increasing excitation density and reaches a saturation energy at a density of 10^5 W/cm². Although this density is larger than the mott density, the transition energy is not equivalent with a transition energy at flat band conditions. The origin of the observed effect is assumed to be the rival process, mentioned above, which comes into play at high carrier densities.

For the GaN/AlGaN heterostructures no spectral shift of the PL was observed within the variation of excitation density.

For the very first time, the stimulated emission of an $[1\bar{1}00]$ -oriented GaN structure was analyzed. A maximum netto gain of 50 cm⁻¹ was observed. From calculations of the mode propagation, a material gain of 1.1×10^4 cm⁻¹ is derived for GaN($1\bar{1}00$). Additionally from the results follows that the recombination of an electron-hole-plasma is the mechanism of the stimulated emission. This is in accordance with most of the published observations for $[0001]$ -oriented GaN heterostructures. A direct comparison of both, the $[1\bar{1}00]$ -oriented specimen and the GaN/AlGaN(0001) structure, which was investigated parallel, was not possible. The reason for that is the strong absorption of the SiC substrate of the latter mentioned structure. It is generally shown, that $[1\bar{1}00]$ -oriented GaN heterostructures offers good starting conditions to realize laser diodes.

The wave guiding was simulated for all of the used specimens. At structures grown on SiC the propagating modes are mainly guided in the substrate due to the larger refractive index of SiC with respect to GaN. The overlap of the amplified mode and the active layer is very small. No optical gain is expected for these structures.

The $[1\bar{1}00]$ -oriented GaN/AlGaN structure shows a significantly improved wave guiding, due to the small refractive index of LiAlO₂ in comparison with GaN. A correlation between the experimentally observed optical gain and the material gain is formed and the results are compared with the literature. A suggestion for an optimized wave guiding in all investigated specimens is given.

Keywords:

GaN, III-V semiconductors, Quantum-confined Stark Effect, m-plane, heterostructures, photoluminescence, stimulated emission, waveguiding

Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit optischen Untersuchungen von MBE-gewachsenen hexagonalen Gruppe-III-Nitridheterostrukturen. Dafür wird die Photolumineszenz von InGaN/GaN- und GaN/AlGaN-Mehrfachquantengrabenstrukturen umfangreich zeitintegriert und zeitaufgelöst studiert. Die Proben unterscheiden sich in den Dicken der Quantengraben und Barrieren (InGaN) bzw. in der kristallografischen Orientierung (AlGaN).

Als Ergebnis der großen, für das Materialsystem charakteristischen, elektrostatischen Felder zeigen die konventionell [0001]-orientierten Heterostrukturen eine verringerte Übergangsenergie und längere Lebensdauern mit zunehmender Quantengrabenbreite und höherem Indiumgehalt in den Gräben. Der beobachtete Einfluss des Quantumconfined Stark-Effektes (QCSE) auf diese Größen kann auch durch Modellrechnungen quantitativ gezeigt werden.

In der Arbeit wird erstmals eine umfangreiche optische Charakterisierung einer neuartigen $[1\bar{1}00]$ -orientierten GaN-Heterostruktur auf γ -LiAlO₂ geboten. Zum Vergleich wird das Verhalten einer identisch aufgebauten, [0001]-orientierten Struktur auf SiC ebenfalls diskutiert. Die $(1\bar{1}00)$ -Probe ist in Wachstumsrichtung frei von elektrostatischen Feldern und unterscheidet sich damit deutlich von den herkömmlichen Nitridstrukturen mit [0001]-Orientierung, deren interne Felder im MV/cm-Bereich liegen. Die spektrale Lage der Photolumineszenz bei geringen Anregungsdichten bestätigt die Flachbandsituation in der Probe. Aufgrund des bei dieser Probe nicht auftretenden QCSE ist hier eine deutlich verkürzte Lebensdauer festzustellen.

Entsprechend der Auswahlregeln für hexagonales GaN weist die $[1\bar{1}00]$ -orientierte Probe eine sehr starke Polarisierung der Photolumineszenz bezogen auf die Lage der [0001]-Achse auf. Die geringe Abweichung des ermittelten Polarisationsgrades von der, für A-Exzitonen in Volumen-GaN zu erwartenden, totalen Polarisierung kann durch das Konfinement in den Quantengraben erklärt werden.

Ein Schwerpunkt der Arbeit ist die Untersuchung der Rekombinationsmechanismen der Proben in Abhängigkeit von der induzierten Ladungsträgerdichte. Diese wird in einem Bereich von sehr geringer Dichte bis über die Mott-dichte variiert. Eine Abschirmung der elektrostatischen Felder mit zunehmender Ladungsträgerdichte wird festgestellt.

Dabei kann bei einer InGaN/GaN-Probe mit 3.1 nm breiten Gräben gezeigt werden, dass neben den internen piezoelektrischen Feldern die in der Literatur diskutierte Lokalisation von Exzitonen an Stöchiometrieschwankungen des Quantengrabens entscheidend die Rekombinationsdynamik in der Probe beeinflusst. Dies spiegelt sich in einer Abhängigkeit der Quantengrabeneigenschaften von den Anfangsbedingungen des Abklingprozesses und

damit einem nicht existierenden allgemein gültigen Zusammenhang zwischen der Lebensdauer und der Ladungsträgerdichte wider.

Die zeitaufgelösten Lumineszenzspektren der InGaN/GaN-Strukturen zeigen als Folge der mit höheren Ladungsträgerdichten zunehmenden Abschirmung eine verringerte Lebensdauer durch die vergrößerte Überlappung von Elektron- und Lochwellenfunktionen. Aufgrund der wieder abnehmenden Abschirmung während des Rekombinationsprozesses verändert sich die Lebensdauer im Laufe der Zeit. Gleichzeitig kommt es zu einer Verringerung der Übergangsenergie des Lumineszenzmaximums durch den weniger abgeschirmten QCSE.

Die zeitintegrierten Photolumineszenzspektren zeigen ebenfalls eine deutliche Abhängigkeit von der Anregungsdichte. Während bei der feldfreien ($1\bar{1}00$)-Probe keine Kompensationseffekte erwartet werden, weisen die Resultate für die konventionellen Proben auf einen, die Ladungsträgerdichte wesentlich beeinflussenden Effekt hin.

Die Abhängigkeit der Intensität der Photolumineszenz von der Ladungsträgerdichte deutet ab einer bestimmten Anregungsdichte auf einen zusätzlichen Prozess, welcher die Ladungsträgerdichte reduziert, sich aber nicht im Lumineszenzspektrum widerspiegelt. Als Erklärung dafür wird die Absorption von stimulierter Emission im Substrat oder in der Pufferschicht angenommen.

Bei den InGaN-Proben schiebt die Übergangsenergie mit höheren Dichten zu größeren Energien und nähert sich bis 10^5 W/cm^2 einem Sättigungswert an. Dieser Wert entspricht trotz Dichten oberhalb der Mottsdichte noch nicht der Flachbandsituation bei vollständig kompensierten internen Feldern. Als Ursache dafür wird der genannte, bei hohen Ladungsträgerdichten einsetzende Konkurrenzprozess gesehen.

Bei den GaN/AlGaIn-Proben kann im untersuchten Bereich der Anregungsdichte keine spektrale Verschiebung im Photolumineszenzspektrum festgestellt werden.

Zum ersten Mal werden experimentelle Untersuchungen zur stimulierten Emission einer $[1\bar{1}00]$ -orientierten GaN-Probe durchgeführt und das optische Gewinnspektrum analysiert. Die Messungen zeigen einen maximalen Nettogewinn von ca. 50 cm^{-1} . Aus der rechnerischen Analyse der Modenausbreitung lässt sich dafür ein Materialgewinn für GaN($1\bar{1}00$) von $1.1 \times 10^4 \text{ cm}^{-1}$ ableiten. Die Ergebnisse zeigen außerdem, dass die Rekombination eines Elektron-Loch-Plasmas der Mechanismus für die stimulierte Emission ist. Dies entspricht dem überwiegenden Teil der in der Literatur veröffentlichten Beobachtungen für $[0001]$ -orientierte Nitridstrukturen. Ein direkter Vergleich mit der parallel untersuchten GaN/AlGaIn(0001)-Probe ist aufgrund der starken Substratabsorption nicht möglich. Es zeigt sich, dass für $[1\bar{1}00]$ -orientierte GaN-Heterostrukturen gute Ausgangsbedingungen für die Realisierung von Laserdioden gegeben sind.

Zu den untersuchten Heterostrukturen wird die Wellenführung in den Proben simuliert. Bei den auf SiC gewachsenen Schichten werden die sich ausbreitenden Moden wegen des deutlich höheren Brechungsindex des Substrates vornehmlich dort geführt. Die Überlappung der Moden mit dem aktiven Schichtpaket ist äußerst gering. Es ist für die Proben

auf SiC kein optischer Gewinn zu erwarten.

Die $[1\bar{1}00]$ -orientierte GaN/AlGaN-Probe besitzt eine deutlich bessere Wellenführung, da das LiAlO_2 einen vergleichsweise kleinen Brechungsindex besitzt. Es wird ein Zusammenhang zwischen experimentell ermitteltem optischen Gewinn und dem Materialgewinn gebildet und das Ergebnis mit Rechnungen aus der Literatur verglichen. Ein Vorschlag für eine optimierte Wellenführung in allen untersuchten Proben wird gegeben.

Schlagwörter:

GaN, III-V Halbleiter, Quantum-confined Stark Effect, M-Orientierung, Heterostrukturen, Photolumineszenz, stimulierte Emission, Wellenführung

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	3
2	Allgemeine Grundlagen	11
2.1	Das Materialsystem (Al,In,Ga)N	11
2.1.1	Verspannungen in hexagonalen Halbleiterschichtsystemen	12
2.1.2	Die elektrische Polarisierung	15
2.1.3	Interne elektrostatische Felder in (Al,In,Ga)N-Quantengraben und der Quantenkonfined Stark-Effekt	17
2.1.4	Lokalisationseffekte durch Fluktuationen der In-Gehaltes in InGaN- Quantengraben	19
2.2	Die ladungsträgerdichteabhängige Situation im Halbleiter	20
2.2.1	Abschätzung der Mottsdichte und Vergleich mit den experimentellen Gegebenheiten	21
2.3	Optischer Gewinn in Halbleitern	25
2.4	Dielektrische Wellenführung in Heterostrukturen	26
3	Experimentelle Grundlagen	29
3.1	Die verwendeten Proben	29
3.1.1	InGaN/GaN 10-fach Quantengrabenstrukturen auf SiC	29
3.1.2	GaN/AlGaN 15-fach Quantengrabenstrukturen auf SiC und γ -LiAlO ₂	30
3.2	Die verwendeten Messmethoden	32
3.2.1	Optische Untersuchungen unter Niederdichteanregung	33
3.2.2	Untersuchungen der Oberflächen-PL bei höheren Ladungsträger- dichten	34
3.2.3	Messungen des optischen Gewinns an (Al,In,Ga)N-Heterostrukturen	35
4	Messergebnisse und Diskussion	39
4.1	Charakteristische Niederdichte-PL-Eigenschaften	40
4.1.1	Die PL-Spektren der InGaN/GaN-Quantengrabenstrukturen	40
4.1.2	Die PL-Spektren der GaN/AlGaN-Quantengrabenstrukturen	43
4.1.3	Optische Polarisierung der PL der [1100]-orientierten GaN/AlGaN-Heterostruktur	45

4.1.4	Charakteristisches Abklingverhalten der untersuchten Heterostrukturen	51
4.2	Untersuchungen von Abschirmeffekten	54
4.2.1	Abhängigkeit des zeitlichen Verhaltens der Rekombination von der Ladungsträgerdichte im Niederdichtebereich	54
4.2.2	Abhängigkeit der Übergangsenergie und der Lumineszenzintensität von der Ladungsträgerdichte oberhalb der Motttdichte	59
4.2.3	Das zeitlichen Verhalten der Rekombination der Ladungsträger bei Hochanregung oberhalb der Motttdichte	66
4.3	Stimulierte PL und Gewinnmessungen	69
4.3.1	Untersuchungen der strichlängenabhängigen Kantenlumineszenz . .	70
4.4	Wellenführung und Analyse der modalen Gewinnspektren	78
Ausblick		85
Literatur		87
Danksagung		95
Publikationen		97
Lebenslauf		99
Selbstständigkeitserklärung		101

Kapitel 1

Einleitung

Die stetige soziale und technologische Entwicklung der Gesellschaft stellt eine Vielzahl von Ansprüchen an Wissenschaft und Technik. Ein immer größerer technischer Komfort, die ständige Weiterentwicklung modernster Technologien in der Medizin, der Kommunikation, der Sensor- und Steuerungstechnik und in vielen anderen Bereichen in Industrie und Gesellschaft und ein damit verbundener stetig steigender Energieverbrauch verlangen nach hocheffizienten, langlebigen, kleindimensionierten und verbrauchsarmen optischen Halbleiter-Bauelementen. Längst haben Bauelemente wie Leuchtdioden (LED) und Laserdioden (LD) Einzug ins tägliche Leben gehalten. LEDs ermöglichen großflächige, elektronische Farbd Displays und haben die Sensortechnik entscheidend vorangetrieben. Rote und grüne LEDs beginnen bereits vielerorts Glühlampen und Farbfilter in Verkehrsampeln zu ersetzen. Infrarote (IR) und rote LDs ermöglichen das Lesen und Schreiben optisch gespeicherter Informationen von CDs, die moderne Kommunikation über Ozeane hinweg und vieles mehr.

Dabei konzentrierte sich der technologische Fortschritt der letzten Jahrzehnte vor allem auf Halbleitermaterialien, die Emissionen vom IR bis in den grünen Spektralbereich ermöglichten. Die Realisierung von Bauelementen für den höherenergetischen Spektralbereich (grün - blau - ultraviolett (UV)) wurde durch den Mangel an einem geeigneten und in seinem physikalischen Verhalten verstandenen Material sehr erschwert. So gibt es mittlerweile zwar grüne und blaue LEDs, aber die kommerzielle Verwirklichung von Laserdioden in diesem Spektralbereich ist bisher nur teilweise und mit stark eingeschränkter Wahl der Emissionswellenlängen gelungen [1, 2]. Der Bedarf an LD mit grünen bis UV Emissionen reicht von der Realisierung von Laser-TV über hochkapazitive Speichermedien [3] bis hin zum Ersatz komplexer Gaslaser in Medizin und Diagnostik.

Die Idee, Licht mittels stimulierter Emission in einem Halbleiter zu verstärken, wurde erstmals 1953 von John von Neumann diskutiert [4]. In den Jahren 1958–61 gab es dann die ersten theoretischen Diskussionen über einen Halbleiterlaser [5]. Neben der ersten LED von General Electric 1962 hatten im selben Jahr dann vier Gruppen praktisch gleichzeitig die ersten GaAs-Laserdioden realisiert, wobei es sich bei dem von Holonyak und Bevacqua [6] veröffentlichten Laser bereits um eine im sichtbaren emittierende LD aus $\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x$ handelte. Die anderen drei sandten infrarotes Licht aus. Alle diese Laser

bestanden aus einfachen p-n-Dioden mit gesägten und polierten Resonatorflächen und wurden bei 77 K im Impuls-Modus betrieben.

Da es sich bei den damaligen Laserdioden um diffundierte Homostrukturlaser handelte, gab es in diesen Bauelementen weder einen Ladungsträgereinschluss in der aktiven Zone, noch eine ausgeprägte Wellenführung. Beide Effekte sind nur durch die Verwendung von Heterostrukturen möglich, bei denen Halbleitermaterialien mit unterschiedlicher Bandlücke und verschiedenem Brechungsindex in einem Wachstumsprozess „aufgewachsen“ werden.

Es brauchte noch einige Jahre, um durch die Entwicklungen der Flüssigphasenepitaxie (Woodall, 1967), der Metallorganischen Gasphasenepitaxie¹ (Manasevit, 1968 [7]) und der Molekularstrahlepitaxie² (Cho, 1971 [8]) die geeigneten Herstellungsverfahren zu erhalten und effiziente Dioden mit hohen Intensitäten zu ermöglichen. 1970 wurden die ersten Laserdioden im Dauerstrichbetrieb bei Raumtemperatur mit stark verringerter Schwellstromdichte realisiert (Alferov *et al.* [9], Hayashi *et al.* [10]). Die parallele Entwicklung bei Leuchtdioden führte bereits Mitte der 1980er zur Massenproduktion roter LEDs mit so großer Helligkeit (Nishizawa *et al.* [11]), dass daraufhin das Ersetzen von Standardrotlichtquellen möglich wurde.

Bei den bis dato realisierten Dioden handelte es sich um Bauelemente auf der Basis von Arseniden und Phosphiden, die aufgrund ihrer Bandlücken LEDs und LDs im Spektralbereich vom IR bis maximal 520 nm (grün) ermöglichten. Kürzere Wellenlängen, also Bauelemente mit blauer bis UV Emission, erfordern Materialien mit größeren Bandlücken, wie sie beispielsweise SiC und die II-VI-Verbindung³ ZnSe aufweisen, aber auch die III-V-Nitridhalbleiter wie GaN.

Die Verwendung von ZnSe und seinen Mischverbindungen Zn(Cd,Mg,S)Se ermöglicht optoelektrische Bauelemente mit Bandabständen bis 4.5 eV, was einer minimalen Wellenlänge von 275 nm entspricht. Hier ist in den letzten Jahren sehr viel geforscht worden. So wurden z. B. die ersten Halbleiterlaser im blaugrünen Spektralbereich (490 nm) auf ZnSe-Basis 1991 von der Firma 3M entwickelt [12]. Die technische Realisierung hocheffizienter und vor allem langzeitstabiler Bauelemente auf Basis dieses Materialsystems wird jedoch durch die große Zahl an Kristalldefekten und deren Zunahme und Ausbreitung während des Betriebes des Bauelementes sehr erschwert. Die Hintergründe davon sind ein wichtiger Gegenstand der aktuellen II-VI-Bauelementeforschung.

SiC als weiterer breitlückiger Halbleiter besitzt im interessierenden Spektralbereich eine indirekte Bandlücke, was sich in den sehr geringen Helligkeiten solcherart LEDs widerspiegelt [13]. Gleiches gilt auch für GaP [14], dessen Bandlücke bei 555 nm im Grüngelben liegt. AlInGaP wiederum bekommt eine nahezu indirekte Bandstruktur, wenn die Emissionswellenlänge ins Grüne geschoben wird [14, 15].

Die Gruppe-III-Nitride GaN und seine Verbindungshalbleiter (Al,In,Ga)N besitzen in

¹MOCVD *engl. Metallorganic Chemical Vapor Deposition*

²MBE *engl. Molecular Beam Epitaxy*

³Als II-VI-Halbleiter bezeichnet man Verbindungshalbleiter, die aus Elementen der II. und VI. Hauptgruppe des Periodensystems bestehen. Analog dazu gibt es dementsprechend III-V-Halbleiter wie GaN oder GaAs.

ihrer hexagonalen Kristallstruktur eine direkte Bandlücke und sind somit sehr gut für optische Bauelemente geeignet. Durch die Wahl der stöchiometrischen Zusammensetzung kann dabei die Emissionsenergie von 1.8 eV (InN) bis 6.2 eV (AlN) durchgestimmt werden und reicht daher von Rot bis UV.

Das Materialsystem (Al,In,Ga)N Die Geschichte der Gruppe-III-Nitridhalbleiter begann bereits 1928 mit der erstmaligen erfolgreichen Herstellung von AlN [16]. GaN und InN folgten dann 1932 bzw. 1938 [17, 18]. Epitaktisches Wachstum von GaN gelang zum ersten Mal Maruska und Tietjen [19] 1969 mittels einer Chlorid-Transport-Gasphasen-Technik auf Saphir (Al_2O_3). 1971 konnten Dingle *et al.* [20] dann erstmals optisch gepumpte stimulierte Emission an kleinen GaN-Kristallen beobachten. Die erste Metall-Isolator-Halbleiterleuchtdiode auf Basis von zinkdotiertem n-Typ GaN wurde 1971 von Pankove *et al.* [21] präsentiert, allerdings noch mit einer sehr geringen Lichtausbeute. Neben der kristallinen Qualität erwies sich die Realisierung von p-dotiertem GaN, für den p-n-Übergang, als sehr schwierig. Die Probleme, qualitativ hochwertige GaN-Schichten zu wachsen, beruhten auf der Kompliziertheit ein geeignetes Substrat mit genügend geringer Gitterfehlpassung zu finden. 1986 gelang der Gruppe um Akasaki [22] das MOCVD-Wachstum von qualitativ hochwertigem GaN auf Saphir, indem sie zwischen Substrat und GaN mehrere AlN-Pufferschichten bei unterschiedlichen Temperaturen wuchs. Diese Gruppe war es auch, die 1988 erstmals das für optische Bauelemente zu bewältigende Problem der p-Dotierung löste, indem sie p-leitende GaN-Schichten durch die Bestrahlung der Probe mit langsamen Elektronen⁴ erzeugen konnten [23]. Dies führte 1989 zur ersten Demonstration einer auf GaN basierenden blauen LED [24].

Die herausragende Person in der Entwicklung von Halbleitern auf Basis der Nitride ist Suhji Nakamura (Nichia Chemical Industries, Japan). 1992 gelang ihm zum ersten Mal die Realisierung von p-dotiertem GaN mit einer sehr hohen Leitfähigkeit, in dem er den bis dato verwendeten Temperungsprozess unter Ammoniakatmosphäre und die daraus resultierenden sehr hochohmigen GaN-Schichten durch die Verwendung einer reinen Stickstoffatmosphäre für die Temperung ersetzte. Ab 1993 wurden unter seiner Regie bereits die ersten sehr hellen (bis 2.5 cd) blauen und grünen LEDs mit bis zu 3 mW Ausgangsleistung bei 450 nm bzw. 500 nm Emissionswellenlänge kommerziell angeboten [25]. 1996 folgte dann der erste blaue Raumtemperatur-Dauerstrichlaser auf Basis von GaN [26].

Mittlerweile sind große Fortschritte in der Entwicklung von (Al,In,Ga)N-LDs gemacht worden und es haben bereits mehrere Arbeitsgruppen Dauerstrich-LDs im Raumtemperaturbetrieb demonstriert, beispielsweise [27, 28, 29, 30, 31]. Technologisch bereits verwirklicht, wird die Lebensdauer von nitridbasierten LDs aktuell mit mehr als 15000 h angegeben [1]. Dies ist wesentlich höher als die Lebensdauer blaugrüner LDs auf Basis von II-VI-Materialien. Jedoch sind trotz dieser Erfolge auch nitridbasierte LDs noch einen großen Schritt von einem kostengünstigen Massenprodukt entfernt. Das wichtigste Problem ist der zu realisierende Spektralbereich. Dieser beschränkt sich bisher nur auf den Bereich von ultravioletter bis blauer Emission (367 nm [32] bis 450 nm [33]). Die Reali-

⁴LEEBI - engl. *Low Energy Electron Beam Irradiation*

sierung von grünen GaN-LDs ist bisher noch nicht gelungen.

Gruppe-III-Nitride werden üblicherweise mit zwei verschiedenen Verfahren hergestellt, der MOCVD und der MBE.⁵ Beim MOCVD-Prozess erfolgt die Abscheidung der Nitride aus der Gasphase, wobei metallorganische Alkylverbindungen (Trimethylgallium, Trimethylindium und Trimethylaluminium) sowie Ammoniak als die Reaktionsgase dienen. Um die nötigen Beweglichkeiten der Adatome auf dem Substrat zu erreichen, werden im Allgemeinen hohe Substrattemperaturen im Bereich um 1050 °C verwendet. Vergleichsweise hohe Wachstumsraten und gute Steuer- und Reproduzierbarkeiten sowie eine Prozessumgebung ohne Ultrahochvakuum (UHV) haben die MOCVD zu der technologischen Grundlage der Herstellung optischer Nitrid-Bauelemente gemacht. Nachteilig wirken sich jedoch die Verwendung extrem giftiger Prozessgase (z. B. für die Dotierung) und die damit verbundenen sehr hohen Sicherheitsvorkehrungen aus.

Bei der MBE reagieren unter UHV-Bedingungen und bei niedrigen Temperaturen (um 800 °C) ein oder mehrere Molekularstrahlen mit der Substratoberfläche. Ein großer Vorteil ist dabei die leichte Steuerung und Justage der Elementarströme über Blenden, was zum einen zu einer guten Kontrolle von Schichtdicken bis zum Wachstum einzelner Atomlagen führen kann und zum anderen ein definiertes Dotieren (z. B. ein Konzentrationsprofil) ermöglicht. Die niedrigen Wachstumstemperaturen verhindern zwar ungewollte thermisch aktivierte Prozesse, wie die Diffusion, jedoch sind damit sehr geringe Wachstumsraten verbunden, die neben den teuren UHV-Bedingungen die industrielle Realisierung erschweren. Die exzellenten Steuerungsmöglichkeiten machen die MBE aber zu einem sehr attraktiven Werkzeug in der Forschung und bei der Realisierung von neuen Bauelementprototypen. Die MBE-Technik als Wachstumsmethode für Nitridhalbleiter hat sich vergleichsweise langsam entwickelt. Während bereits Mitte der 1990er die MOCVD eine ausgereifte Prozesstechnik darstellte, führten die technischen Voraussetzungen mit ineffizienten Stickstoffquellen, die einen eher geringen Reinheitsgrad besaßen, noch Anfang 1998 zu sehr rauen Grenz- und Oberflächen und hohen Versetzungsdichten beim Nitridwachstum mit der MBE. In den letzten drei Jahren hat der Prozess mehr und mehr an Bedeutung gewonnen. Zahlreiche Arbeitsgruppen experimentierten mit MBE-gewachsenen Nitriden und verbesserten Techniken, besser präparierten und auch ganz neuen Substraten und entwickelten dadurch die MBE zu einem, wenn eben auch bisher nur in der Forschung, vergleichsweise geeigneten Herstellungsverfahren.

Das am häufigsten verwendete Substrat für das Wachstum von Gruppe-III-Nitriden ist Saphir. Das in sehr hoher Kristallqualität großflächig herstellbare Saphir ist kostengünstig, optisch transparent und stabil bei hohen Temperaturen, wie sie im Wachstumsprozess der Nitride benötigt werden. Es besteht allerdings eine sehr hohe Gitterfehlانpassung zwischen Saphir und dem aufzuwachsenen GaN von $\approx 15\%$, was zu hohen Verspannungen im GaN und zu geringen kritischen Schichtdicken, ab denen Relaxation eintritt, führt. Zusätzlich zum deutlichen Unterschied der Gitterkonstanten besteht eine große Differenz zwischen den thermischen Ausdehnungskoeffizienten von Substrat und Schicht. Im Allge-

⁵Ausführliche Informationen zum Nitrid-Wachstum gibt es beispielsweise bei Akasaki und Amano [34] bzw. Jain *et al.* [35].

meinen ist daher sowohl die kristallografische, als auch die optische Qualität von direkt auf Saphir abgeschiedenen GaN-Schichten, unabhängig von der verwendeten Substratorientierung, sehr schlecht. Eine Verbesserung der Schichtqualitäten lässt sich jedoch bei MOCVD- und MBE-Wachstum durch das erwähnte Aufbringen von Pufferschichten bei tieferen Temperaturen erreichen [35]. Seine mangelnde Spaltbarkeit sowie die sehr schlechte elektrische Leitfähigkeit sind weitere Nachteile, die die Realisierung von Halbleiter-Bauelementen, wie beispielsweise LDs, auf Saphirsubstraten erschweren.

Siliziumkarbid (SiC), genauer 6H-SiC, hat im Vergleich zu Saphir nur eine Gitterfehlpassung von $\approx 3.4\%$ gegenüber GaN, einen dem GaN sehr ähnlichen thermischen Ausdehnungskoeffizienten und besitzt außerdem eine gute elektrische Leitfähigkeit. Große Substrate von hoher Qualität sind auch hier kommerziell erhältlich. Der wichtigste Vorteil von SiC gegenüber Saphir ist die aus dem kleinen Unterschied der Gitterkonstanten und der Ausdehnungskoeffizienten resultierende, wesentlich geringere Verspannung von aufgewachsenen GaN-Schichten. Dies führt zu deutlich geringeren Defektdichten im kritischen Anfangsbereich der Epitaxie. Der große Nachteil ist sein hohes Absorptionsvermögen im für optische Bauelemente auf Nitridbasis interessanten Spektralbereich (direkte Bandlücke bei Raumtemperatur, 6H-SiC: 3.02 eV [36]). Mit zusätzlichen Pufferschichten zwischen dem Substrat und den aktiven Schichten lässt sich das Substrat jedoch optisch abkoppeln.

Für die Integration von Nitrid-LEDs und -LDs in die weit verbreitete Si-Technologie besteht die Notwendigkeit, diese Bauelemente auf Siliziumchips aufzubringen. Dazu wurde eine große Zahl an Untersuchungen durchgeführt [37]. Im Unterschied zu den oben genannten Fällen, bei denen hexagonales GaN entsteht, wächst GaN auf (100)Si im Allgemeinen in seiner kubischen Form und ist mit einer hohen Zahl an Gitterfehlern versehen. Mit einer Reihe weiterer Substrate ist in der Vergangenheit das Wachstum von GaN experimentell untersucht worden, so z. B. GaAs, MgAl_2O_4 , Glas, Quartzglas und ZnO. Ihre allgemeine Bedeutung ist jedoch relativ gering. Die Qualitäten von GaN auf diversen Substratmaterialien sind in [37, 38] genauer diskutiert worden. Homoepitaktisches Wachstum von GaN ist bisher nur auf sehr kleinen (Größenordnung mm) GaN-Einkristallsubstraten realisiert worden [39].

Hellman *et al.* [40] untersuchten 1997 erstmals das Wachstum von GaN auf $\gamma\text{-LiAlO}_2$. Aufgrund der sehr günstigen Gitterfehlpassung zwischen dem Substrat und der $(1\bar{1}00)$ -Fläche von GaN erwarteten sie anstelle der üblichen [0001]-Orientierung eine bevorzugte Filmorientierung entlang $[1\bar{1}00]$. Die experimentelle Umsetzung mittels MBE misslang jedoch aufgrund ungenügend präparierter Substratoberflächen⁶. Sie gelang dann 1998 Ke *et al.* [41]. Nach der Epitaxie von GaN-Filmen auf $\gamma\text{-LiAlO}_2(100)$ Einkristallen mittels MOCVD beobachteten sie in Röntgenstreuexperimenten eine stark bevorzugte $[1\bar{1}00]$ -Orientierung des Films. Waltereit *et al.* [42] demonstrierten mit MBE daraufhin 2000 erstmals die erfolgreiche Herstellung von $[1\bar{1}00]$ -orientierten GaN/AlGaIn-Heterostrukturen auf $\gamma\text{-LiAlO}_2(100)$. Ein Schritt, dessen Bedeutung später in dieser Arbeit noch

⁶Die abgeschiedenen Schichten besaßen eine [0001]-Orientierung mit einer leichten Verkipfung von 0.6° zur Wachstumsrichtung.

deutlich gemacht werden wird.

Neben der Analyse der Wachstumsvorgänge und der strukturellen Zusammensetzung der Proben durch RHEED (*engl. Reflection High Energy Electron Diffraction*), Rasterkraftmikroskopie (AFM *engl. Atomic Force Microscopy*), Rasterelektronenmikroskopie (REM) und Röntgenstreuexperimenten (XRD *engl. X-Ray Diffraction*) sind die optischen Untersuchungen der gewachsenen Halbleitermaterialien die aussagekräftigsten Verfahren, um die Eigenschaften des Materialsystems und seine Rekombinationsmechanismen zu analysieren und dadurch effiziente optische Bauelemente zu entwickeln. Als wirksame Werkzeuge werden dabei vor allem die spektralen und zeitlichen Abhängigkeiten der Photolumineszenz (PL) untersucht und die Reflexion und Absorption bestimmt.

Trotz der erfolgreichen Entwicklung von blaugrünen und UV-emittierenden, nitridbasierenden Bauelementen sind noch zahlreiche Fragen zu den grundsätzlichen Mechanismen in den Nitriden offen. Von ihrer Klärung hängt es ab, den gesamten prinzipiell zur Verfügung stehenden Spektralbereich auch für LDs kommerziell nutzen zu können. Auf Grund ihrer hexagonalen Symmetrie besitzen wurzite GaN-Heterostrukturen sehr große spontane und piezoelektrische Polarisationsfelder [43, 44] die einen großen Einfluss auf die strahlende Rekombination von Quantengräben haben [45]. So weisen die Gruppe-III-Nitride gegenüber anderen Halbleitermaterialien Phänomene in der PL auf, deren Ursachen in der Literatur teilweise noch heftig umstritten sind. Dazu gehören (a) eine große Verschiebung zwischen der bandkantenbezogenen PL und der Absorptionskante (Stokesverschiebung), (b) eine Blauverschiebung der Übergangsenergie mit zunehmender Anregungsintensität, (c) eine anormale Temperaturabhängigkeit der PL mit einem anfänglichen Blauschieben und einer späteren Rotverschiebung der PL bei steigenden Temperaturen und (d) eine stark reduzierte Oszillatorstärke mit steigender Grabendicke.

Trotz jahrzehntelanger Arbeit vieler Gruppen, vor allem in Japan, den USA und Deutschland und der sehr großen Zahl an Publikationen zu optischen Untersuchungen an (Al,In,Ga)N-Strukturen werden diese experimentellen Ergebnisse in der Literatur noch immer sehr kontrovers diskutiert. Dabei werden im Allgemeinen die starken elektrostatischen Felder in den Heterostrukturen als die Ursache der Phänomene angenommen, z. B. [46, 47, 48, 49, 50, 51]. Jedoch kommt speziell in (In,Ga)N-Heterostrukturen auch noch ein zweiter Punkt in Frage, die Lokalisation von Ladungsträgern in Bereichen des Quantengrabens, die einen höheren Indium-Gehalt haben, als die sie umgebende Matrix, z. B. [52, 53, 54, 55]. Da diese Neigung zur Separation der Phasen im $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ -Mischkristall mit größeren x zunimmt, ist die Realisierung von optischen Bauelementen mit InGaN für Wellenlängen größer 420 nm (blaugrün bis grün), also ungefähren Indiumgehalten $> 20\%$, sehr erschwert. Beide Phänomene, hohe interne elektrostatische Felder und Stöchiometrieschwankungen in den Quantengräben, führen zu ähnlichen experimentellen Beobachtungen und sind somit schwer voneinander zu trennen bzw. ihre Einflüsse nur schwer zu quantifizieren.

Die Untersuchung der Rekombinationsmechanismen und vor allem der Einfluss der internen Felder bzw. der Inhomogenitäten in der Zusammensetzung im InGaN-Grabenmaterial auf diese wurde in der Literatur hauptsächlich in Abhängigkeit der Quantengrabendicke untersucht, z. B. [45, 48, 51, 56, 57, 58, 59]. Der Einfluss der induzierten Ladungsträger-

dichte auf die Rekombination, beispielsweise die Abschirmung interner elektrostatischer Felder, wurde bisher vergleichsweise wenig diskutiert [60, 61]. Die Untersuchung dieses Verhaltens bietet jedoch einen interessanten Schlüssel zu den charakteristischen Rekombinationsmechanismen der GaN-Strukturen und kann hilfreich sein, diese Mechanismen besser zu verstehen. Sie sind ein Schwerpunkt dieser Arbeit.

Die hexagonale Symmetrie der Nitride führt aufgrund ihrer polaren c -Achse zu einer Anisotropie der Eigenschaften von wurziten GaN-Halbleitern. Neben der spontanen elektrischen Polarisation entlang dieser Achse entstehen beim Wachstum von Heterostrukturen üblicherweise riesige pyro- und piezoelektrische Felder, da die standardmäßige Wachstumsrichtung entlang dieser Achse, entlang $[0001]$, verläuft. Nachdem nun Waltereit *et al.* [42] erstmals die Herstellung von GaN-Heterostrukturen mit einer Orientierung senkrecht zur polaren c -Achse, entlang $[1\bar{1}00]$, realisieren konnten, ergab sich damit zum ersten Mal die Möglichkeit GaN-Heterostrukturen in Wurtzitstruktur herzustellen, bei denen die elektrostatischen Feldern vermieden werden konnten. Diese Ergebnisse waren der erste Schritt zu optischen GaN-Bauelementen, die die Vorteile der Nitride, wie die große, direkte Bandlücke, nutzen können, ohne durch interne elektrostatische Felder in ihrer Rekombination negativ beeinflusst zu sein. Die erstmalige umfassende optische Untersuchung einer solchen Probe ist ein weiterer Schwerpunkt der Dissertation.

Die Dissertation Die vorliegende Arbeit gliedert sich folgendermaßen. Nach der Einführung in das GaN-Materialsystem werden in Abschnitt 2 einige grundsätzliche physikalische Besonderheiten von Gruppe-III-Nitriden vorgestellt. Das Verständnis der großen internen elektrostatischen Felder, wie sie in ihrer Größe in keinem anderen III-Ver Materialsystem vorkommen, ist ausschlaggebend für die Realisierung optischer Bauelemente auf der Basis von GaN. Der optische Gewinn ist einer der wesentlichen Parameter für Laserdioden. Eine nähere Betrachtung dieser Zusammenhänge und der dielektrischen Wellenführung in Halbleiter-Schichtsystemen wird ebenfalls in dem Abschnitt gegeben. Es wird hier die Situation der Bandstruktur entsprechend der je nach den Messbedingungen verwendeten Ladungsträgerdichten bestimmt und mit Blick auf die abgeschätzte Mottdichte diskutiert. Abschnitt 3 stellt die untersuchten InGaN- und AlGaN-Proben auf 6H-SiC bzw. γ -LiAlO₂ vor und gibt einen kurzen Überblick über die verwendeten experimentellen Herangehensweisen.

Die Ergebnisse der Untersuchungen werden in Abschnitt 4 vorgestellt. Dabei wird mit den zur Verfügung stehenden Proben der Einfluss der elektrostatischen Felder auf die Rekombinationsmechanismen von GaN-Heterostrukturen auf unterschiedlichen Wegen untersucht. Der Vergleich der neuartigen, „feldfreien“ GaN/AlGaN-Quantengrabenstruktur mit einer konventionellen, identisch aufgebauten Probe mit internen Feldern gibt generell Aufschluss über die Konsequenzen der Felder auf das Bandprofil und das optische Verhalten von GaN-Strukturen. Dabei wird zum ersten Mal eine auf GaN basierende Heterostruktur mit $[1\bar{1}00]$ -Orientierung ausführlich optisch charakterisiert. Die Abhängigkeit der PL von der optisch induzierten Ladungsträgerdichte zeigt Abschirmungseffekte der Felder in den $[0001]$ -orientierten Proben und ermöglicht die Diskussion der Lumineszenz-

eigenschaften in den herkömmlichen InGaN- und AlGaN-Quantengrabenstrukturen. Die Messungen des optischen Gewinns erlauben Aussagen zu den Gewinnmechanismen in unterschiedlich orientierten GaN-Heterostrukturen.

Zu Beginn in Abschnitt 4 werden in 4.1 die charakteristischen optischen Eigenschaften der verwendeten Quantengrabenstrukturen vorgestellt und anhand ihres experimentellen Verhaltens und ihrer berechneten Bandkantenverläufe diskutiert. Dabei wird neben der PL bei geringen Anregungsdichten und der zeitaufgelösten PL in Abschnitt 4.1.3 auch die Polarisationsabhängigkeit der PL, als Besonderheit der (1 $\bar{1}$ 00)-gewachsenen Probe, analysiert.

In Abschnitt 4.2 wird der Einfluss der induzierten Ladungsträger auf die Rekombinationsmechanismen näher betrachtet. Der Schwerpunkt liegt dabei auf der Untersuchung der Abschirmung der internen Felder durch optisch induzierte Ladungsträger und auf der Abhängigkeit der spontanen PL von der Ladungsträgerdichte bei den [0001]-orientierten Mehrfachquantengrabenstrukturen. Es wird sowohl das zeitaufgelöste als auch das spektrale Verhalten der Strukturen betrachtet. Dabei zeigt sich, dass die Abschirmung der Felder sich sowohl in einer Kompensation der Stokesverschiebung (*engl. Stokes Shift*), als auch in einer erhöhten Rekombinationsrate widerspiegelt. Für die Probe mit einer Quantengrabenbreite von 3.1 nm wird nachgewiesen, dass neben den internen Feldern auch die Lokalisation von Exzitonen an Stöchiometrieschwankungen einen entscheidenden Einfluss auf die Rekombinationsdynamik hat.

Für optische Bauelemente und speziell für LDs hat die stimulierte Emission eine besondere Bedeutung, weshalb in Abschnitt 4.3 die Lasingeigenschaften aller in der Arbeit untersuchten Proben typen diskutiert werden. Es werden erstmals experimentell ermittelte Gewinnspektren einer GaN(1 $\bar{1}$ 00)-Heterostruktur gezeigt und die zugrundeliegenden Rekombinationsmechanismen analysiert.

Entscheidend für die Ausbreitung des verstärkten Lichtes in der aktiven Schicht sind die Wellenleitungseigenschaften der einzelnen Quantengrabenstrukturen. Speziell bei den konventionellen (Al,In,Ga)N-Strukturen auf SiC sind die Voraussetzungen aufgrund des hohen Brechungsindex des Substrates nicht günstig. In Abschnitt 4.4 werden, mit Schwerpunkt auf den GaN/AlGAN-Proben, die Ergebnisse von Simulationen zur Wellenführung in den einzelnen Proben vorgestellt und zur Interpretation der experimentellen Untersuchungen der stimulierten Emission verwendet.

Kapitel 2

Allgemeine Grundlagen

2.1 Das Materialsystem (Al,In,Ga)N

Wurzite GaN-Heterostrukturen weisen eine große Rotverschiebung der bandkantenbezogenen PL gegenüber der Absorptionskante auf, welche mit steigender Quantengraben­dicke immer größer wird, z. B. [46, 48, 47, 49]. Dies ist üblicherweise mit einer Reduzierung der Oszillatorstärke und somit einer Zunahme der strahlenden Lebensdauer verbunden. Wie bei [60, 61, 62, 63] und als ein Schwerpunkt dieser Arbeit zu sehen, tritt mit steigender Anregungsdichte eine Blauverschiebung der Übergangsenergie auf, die bei hohen Dichten zur Sättigung kommt. Alle diese Effekte deuten auf die Existenz hoher interner elektrostatischer Felder in den Heterostrukturen hin, die einen großen, mit dem Quantenkonfinement verbundenen Stark-Effekt (QCSE *engl. Quantumconfined Stark Effect*)¹ bewirken. Die Ursache dieser Felder ist die Existenz riesiger elektrischer Polarisationsfelder, die durch die sehr großen piezoelektrischen Konstanten der (Al,In,Ga)-Nitride, welche mehr als eine Größenordnung oberhalb der der anderen III-V-Halbleiter liegen, entstehen.

Die hexagonale GaN-Einheitszelle Die Präsenz einer elektrischen Polarisierung in einem Kristall ist eng verknüpft mit der Symmetrie der Einheitszelle. Nitrid-Halbleiter können sowohl in Zinkblende- als auch in Wurtzitstruktur kristallisieren. Der Hauptunterschied zwischen beiden Strukturen ist die Stapelfolge der einzelnen Ebenen jeweils einer Atomsorte (z. B. Ga oder N) bzw. der zweiatomigen Basis (GaN). Für ein GaN-Zinkblendegitter ist die Folge der Ebenen in Richtung $\{111\}$

$$Ga_A N_A Ga_B N_B Ga_C N_C Ga_A N_A Ga_B N_B Ga_C N_C \dots,$$

während sie für die Wurtzitstruktur entlang der c-Achse in Richtung $\{0001\}$ folgendermaßen aussieht:

$$Ga_A N_A Ga_B N_B Ga_A N_A Ga_B N_B Ga_A N_A \dots$$

Die unterschiedlichen Gittertypen und Stapelfolgen ergeben unterschiedliche Kristallsymmetrien, die das Überführen der einzelnen mit Atomen besetzten Kristallpunkte durch

¹ *confinement (engl.) - räumliche Einschränkung.*

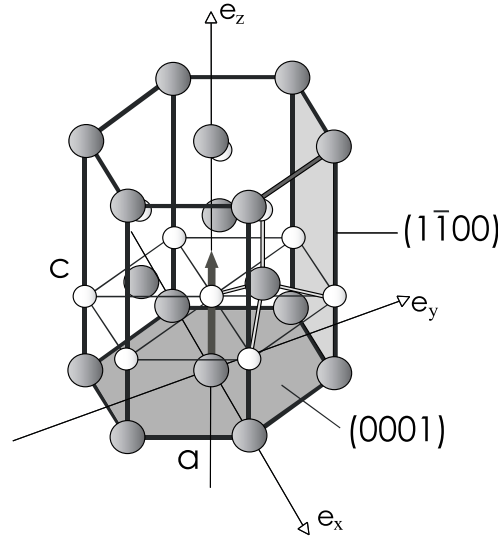


Abbildung 2.1: Schematische Darstellung der GaN-Einheitszelle mit Wurzitstruktur. Die dunklen und die hellen Kreise stellen die jeweilige Atomsorte (Ga bzw. N) dar. Die tetraedische Bindung eines Atoms zu seinen nächsten Nachbarn ist schematisch eingezeichnet. Zum Verständnis des Folgenden sind die Flächen (0001) und (1 $\bar{1}$ 00), also die C- und die M-Fläche gekennzeichnet. Die Achsen e_x , e_y und e_z entsprechen den orthonormalen Basisvektoren.

die Durchführung von Dreh- und Translationsoperationen in sich selbst beschreiben. Sie werden in eine Vielzahl von Punkt- und Raumgruppen eingeteilt. Die entsprechenden Punktgruppen (auch Kristallklassen) sind T_d für den Zinkblendefall und C_{6v} für die Wurzitsymmetrie [64].

Kristallografisch gesehen, liegen beide Strukturen sehr nah beieinander. Die Bindung zu den nächsten Nachbarn ist in beiden Fällen tetraedisch. Die wurzite Kristallstruktur ist die wesentlich häufiger vorkommende Form des GaN, die auch bei allen in dieser Arbeit untersuchten Proben vorlag. Hauptaugenmerk soll deshalb auf diese Struktur gelegt werden. Das Bravaisgitter der Wurzitstruktur ist hexagonal und in Abbildung 2.1 mit den Gitterkonstanten a und c dargestellt. Zusammen mit dem Parameter u , der Anion-Kation-Bindungslänge entlang der [0001]-Achse (Angabe in Einheiten von c), definieren sie die Zelle. Die Größen werden für GaN in [36] mit $a = 3.160 \dots 3.190 \text{ \AA}$ bzw. $c = 5.125 \dots 5.190 \text{ \AA}$ angegeben, abhängig von Temperatur und Dotierung.

2.1.1 Verspannungen in hexagonalen Halbleiterschichtsystemen

Aufgrund der unterschiedlichen Gitterkonstanten von AlN, InN und GaN treten beim Wachstum von Schichtsystemen aus Gruppe-III-Nitrid-Halbleitern im Allgemeinen Gitterfehlanpassungen im Prozentbereich auf. Unterhalb einer kritischen Schichtdicke, bevor Relaxation auftritt, kommt es daher zu Verspannungen in einzelnen Schichten. Zusätzlich führen die verschiedenen thermischen Ausdehnungskoeffizienten der verwendeten Materia-

lien für Schicht und Substrat bzw. zwischen den einzelnen Schichten ebenfalls zu mechanischen Spannungen im System. Die resultierenden Verspannungen in solchen Schichtsystemen spielen eine große Rolle für das Verhalten dieser Halbleiter (Piezo-Effekt, Bandlückenveränderung), weshalb im Folgenden ein kurzer Einblick in das Thema Verspannungen gegeben werden soll.

Für dünne Schichten auf einem im Verhältnis dazu dicken Substrat kann angenommen werden, dass sich die Gitterkonstante der Schicht voll der des Substrates anpasst. Die Schicht ist dabei stark elastisch verspannt. Man bezeichnet dies als kohärentes oder pseudomorphes Wachstum. Inkohärentes Wachstum tritt auf, wenn oberhalb der kritischen Schichtdicke Relaxation eintritt und beispielsweise durch den Einbau von Versetzungen Spannungen abgebaut werden. Dadurch weicht die Gitterkonstante der Schicht von der des Substrates ab. Für die weitere Betrachtung bietet sich die Einführung des kartesischen Koordinatensystems an. Dabei werden die primitiven Translationsvektoren \mathbf{a}_1 , \mathbf{a}_2 und \mathbf{a}_3 durch die unverspannten Gitterkonstanten a_0 und c_0 und die orthonormalen Basisvektoren \mathbf{e}_x , \mathbf{e}_y und \mathbf{e}_z (s. Abb. 2.1) beschrieben:

$$\mathbf{a}_1 = a_0 \mathbf{e}_x, \quad \mathbf{a}_2 = -\frac{a_0}{2} \mathbf{e}_x + \frac{\sqrt{3}}{2} a_0 \mathbf{e}_y, \quad \mathbf{a}_3 = c_0 \mathbf{e}_z. \quad (2.1)$$

Für ternäre Materialien $A_{1-x}B_xC$ können die beiden unverspannten Konstanten a_0 und c_0 nach dem Vegardschen Gesetz

$$a_0^{A_{1-x}B_xC} = (1-x)a_0^{AC} + xa_0^{BC} \quad (2.2)$$

bestimmt werden, wo x die Konzentration sowie a_0^{AC} und a_0^{BC} die Gitterkonstanten der binären Verbindungen AC und BC sind².

Der Vektor \mathbf{a}_3 ist parallel zur c-Achse und steht senkrecht auf der Basisfläche der Elementarzelle, die durch \mathbf{a}_1 und \mathbf{a}_2 sowie den Winkel von 120° zwischen beiden definiert wird.

Die durch eine äußere Spannung erzwungene Verschiebung der Atome einer Einheitszelle wird durch einen Tensor zweiter Stufe beschrieben und in einen symmetrischen und einen asymmetrischen Anteil unterteilt. Der asymmetrische Tensor beschreibt die Rotation des Kristalls und bewirkt keine Veränderung der energetischen Eigenschaften³. Der symmetrische Tensor ϵ_{kl} dagegen beschreibt die Verspannung innerhalb des Kristalls, die durch die Verzerrung der Elementarzelle entsteht. Diese Verzerrung spiegelt sich in der Veränderung der primitiven Translationsvektoren aus Gleichung 2.1 wider und kann die energetischen Eigenschaften des Materials verändern [66]. Die modifizierten Vektoren ergeben sich aus der linearen Superposition der geänderten, ursprünglichen Basisvektoren. Für den allgemeinen Fall bedeutet dies

$$\begin{aligned} \tilde{\mathbf{e}}_x &= (1 + \epsilon_{xx})\mathbf{e}_x + \epsilon_{xy}\mathbf{e}_y + \epsilon_{xz}\mathbf{e}_z \\ \tilde{\mathbf{e}}_y &= \epsilon_{yx}\mathbf{e}_x + (1 + \epsilon_{yy})\mathbf{e}_y + \epsilon_{yz}\mathbf{e}_z \\ \tilde{\mathbf{e}}_z &= \epsilon_{zx}\mathbf{e}_x + \epsilon_{zy}\mathbf{e}_y + (1 + \epsilon_{zz})\mathbf{e}_z \end{aligned} \quad (2.3)$$

²Gleichung 2.2 gilt mit c_0 anstelle von a_0 natürlich ebenso.

³Röntgenbeugungsuntersuchungen haben ergeben, dass für die hier untersuchten Proben eventuelle Rotationen der Elementarzelle zu vernachlässigen sind [65].

mit den Elementen ϵ_{kl} des Verzerrungs- bzw. Verspannungstensors. Der symmetrische Verspannungstensor ist ein Tensor zweiter Stufe und besteht aus sechs unabhängigen Elementen. Diese Elemente entsprechen den verschiedenen Situationen, wie der Kristall verformt werden kann, wobei ϵ_{xx} , ϵ_{yy} und ϵ_{zz} die Komponenten der senkrechten Verspannungen sind und ϵ_{xy} , ϵ_{xz} und ϵ_{yz} möglichen Scherspannungen entsprechen. Bei kleinen Verzerrungen besteht nach dem Hookeschen Gesetz ein linearer Zusammenhang zwischen dem Spannungstensor σ und Verspannungstensor ϵ

$$\sigma_{ij} = \sum_{kl} C_{ijkl} \epsilon_{kl}. \quad (2.4)$$

Dabei bilden die elastischen Konstanten C_{ijkl} einen Tensor vierter Stufe, dessen Zahl unabhängiger Konstanten jedoch stark von kristallsymmetrischen Betrachtungen abhängt. In unserem Fall mit symmetrischen Spannungs- und Verspannungstensen ergibt sich ein Tensor quasi-zweiter Stufe C_{ij} . Unter Beachtung der hexagonalen Symmetrie der Elementarzelle [64] lässt sich Gleichung 2.4 in der Voigtschen Indizierung folgendermaßen schreiben

$$\begin{pmatrix} \sigma_{xx} \\ \sigma_{yy} \\ \sigma_{zz} \\ \sigma_{yz} \\ \sigma_{xz} \\ \sigma_{xy} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{13} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{11} & C_{13} & 0 & 0 & 0 \\ C_{13} & C_{13} & C_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & C_{66} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} \\ \epsilon_{yy} \\ \epsilon_{zz} \\ \epsilon_{yz} \\ \epsilon_{xz} \\ \epsilon_{xy} \end{pmatrix}. \quad (2.5)$$

Bei dem Wachstum einer Schicht auf einem Substrat liegen die Kräfte, die auf die Elementarzelle wirken, in der Wachstumsebene. Entlang der Wachstumsrichtung kann sich die Zelle ungehindert zusammenziehen bzw. ausdehnen und so wirken keine Kräfte in diese Richtung. Die Zelle steht entlang des Wachstums nicht unter Spannung. In Abhängigkeit von der Lage der Elementarzelle, bezogen auf die Wachstumsrichtung, respektive ihre Achsenlage, ergeben sich unterschiedliche Verspannungssituationen für die hexagonale Zelle.

Wachstum entlang [0001] Beim Wachstum entlang der c-Achse entspricht die Wachstumsebene der xy -Ebene, und die Deposition erfolgt entlang der z -Richtung. Dabei kann davon ausgegangen werden, dass bei der Abscheidung von GaN auf SiC die Verspannungen in der Ebene immer isotrop sind ($\epsilon_{xx} = \epsilon_{yy}$) [65]. Wenn man die Epitaxie einer Schicht mit den unverspannten Gitterkonstanten a_0 und c_0 auf einem Substrat mit den Gitterkonstanten a_S und c_S annimmt, tritt in der Wachstumsebene eine Gitterfehlانpassung entsprechend $(a_0 - a_S)/a_S$ auf. (Aus praktischen Gründen ist es angebracht, sich an dieser Stelle anstatt auf die orthonormalen Basisvektoren direkt auf die reellen Gitterkonstanten zu beziehen.) Die sich dann in Abhängigkeit von der Relaxation einstellenden Gitterkonstanten der Schicht a und c bestimmen die Verspannungen ϵ_{\parallel} und ϵ_{\perp} , in der xy -Ebene und senkrecht dazu.

$$\epsilon_{\parallel} = \epsilon_{xx} = \epsilon_{yy} = (a - a_0)/a_0, \quad \epsilon_{\perp} = \epsilon_{zz} = (\tilde{c} - c_0)/c_0 \quad (2.6)$$

Aus den obigen Betrachtungen ergibt sich Gleichung 2.5 bei einer Indizierung des Spannungstensors analog der des Verspannungstensors zu

$$\begin{pmatrix} \sigma_{\parallel} \\ \sigma_{\perp} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} C_{11} + C_{12} & C_{13} \\ 2C_{13} & C_{33} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \epsilon_{\parallel} \\ \epsilon_{\perp} \end{pmatrix}. \quad (2.7)$$

Bei der Annahme, dass keine Spannungen entlang der Wachstumsrichtung auftreten, also $\sigma_{\perp} = 0$ ist, folgt daraus

$$\frac{\epsilon_{\perp}}{\epsilon_{\parallel}} = -2 \frac{C_{13}}{C_{33}}. \quad (2.8)$$

Eine in der Wachstumsebene kompressiv verspannte Schicht erfährt demnach eine Vergrößerung in Wachstumsrichtung bzw. umgekehrt, eine zugverspannte Elementarzelle verkürzt sich in Wachstumsrichtung. Die im verspannten Zustand aktuell vorhandene Gitterkonstante \tilde{c} eines Materials ergibt sich entsprechend der Gleichungen 2.6 und 2.8 demzufolge aus

$$\tilde{c} = c_0 \left(1 - 2 \frac{C_{13}}{C_{33}} \epsilon_{\parallel} \right). \quad (2.9)$$

Die Verknüpfung von Spannung und Verspannung in der xy -Ebene, σ_{\parallel} und ϵ_{\parallel} , folgt aus Gleichung 2.7 mittels des sogenannten Young-Moduls

$$Y = C_{11} + C_{12} - 2 \frac{C_{13}^2}{C_{33}} \quad (2.10)$$

über $\sigma_{\parallel} = Y \epsilon_{\parallel}$ und entspricht dem Hookeschen Gesetz für isotrope Verspannungen in der Wachstumsebene bei gleichzeitig fehlender Verspannung in Richtung des Kristallwachstums [67].

Wachstum entlang $[1\bar{1}00]$ Bei einer Deposition entlang der y -Richtung bildet die xz -Ebene die Wachstumsebene und $\sigma_{yy} = 0$. Die c -Achse der Elementarzelle liegt in der Ebene. In diesem Fall ist die Verspannung einer gitterangepassten Schicht in der Ebene im Allgemeinen anisotrop ($\epsilon_{xx} \neq \epsilon_{zz}$). Entsprechend Gleichung 2.8 für eine $[0001]$ -orientierte Schicht kann auch hier aus Gleichung 2.5 eine wachstumsgerichtete Verspannung bezüglich der Verspannungen in der Ebene abgeleitet werden

$$\epsilon_{yy} = - \frac{C_{12}\epsilon_{xx} + C_{13}\epsilon_{zz}}{C_{11}}. \quad (2.11)$$

2.1.2 Die elektrische Polarisation

Ohne ein äußeres elektrisches Feld ergibt sich die gesamte makroskopische Polarisation eines Festkörpers aus der Summe der spontanen Polarisationen der Gleichgewichtsstruktur und der verspannungsinduzierten, piezoelektrischen Polarisation.

Die *spontane Polarisation* ist eine Eigenschaft von niedrigsymmetrischen Materialien in ihrem Grundzustand und ist unabhängig von der Verspannung. Während bei Zinkblende-Halbleitern wie GaAs die vier polaren $\langle 111 \rangle$ Achsen sich gegenseitig kompensieren und

somit keine Polarisierung im Grundzustand vorhanden ist, besitzt die wurzite Phase eine einzelne polare Achse, die c- bzw. [0001]-Achse. Dieser Fall wird im Allgemeinen als *pyroelektrisch* bezeichnet und führt zu einer spontanen elektrischen Polarisierung auch im Gleichgewichtszustand. Die Größe dieser Polarisierung ändert sich entsprechend des thermischen Ausdehnungskoeffizienten in Abhängigkeit von der Temperatur.

Optische Bauelemente bestehen in der Regel aus einer Vielzahl dünner Schichten unterschiedlicher materieller Zusammensetzung. Da sich in einer solchen Heterostruktur die Gitterkonstante eines Materials von der darunterliegenden Schicht meistens unterscheidet, sind einzelne Schichten in einer Struktur verspannt gewachsen. Die Gitterkonstanten entsprechen dann nicht ihren Gleichgewichtsgrößen. Die Verformung der Einheitszelle kann zu einer zusätzlichen Polarisierung, der sogenannten *piezoelektrischen Polarisierung*, führen. Diese hängt von der Symmetrie der Einheitszelle und der Wachstumsrichtung ab. Im Zinkblendefall führt das Wachstum in $\langle 001 \rangle$ zu keiner Polarisierung, da sich die vier polaren Achsen weiterhin gegenseitig kompensieren. Erfolgt das Wachstum jedoch entlang einer der polaren Achsen, kommt es nicht mehr zu einer Kompensation, piezoelektrische Polarisierung tritt auf. Für die Wurzitstruktur gestaltet sich die Situation aufgrund der einzelnen polaren [0001]-Achse etwas anders. Hier kann das Wachstum entlang jeder möglichen Kristallrichtung zu einer piezoelektrischen Polarisierung führen, abhängig von dem entsprechenden Verspannungszustand der Zelle.

Wie bereits erwähnt, ist die totale elektrische Polarisierung \mathbf{P} die Summe der spontanen Polarisierung \mathbf{P}_{SP} und der piezoelektrischen Polarisierung \mathbf{P}_{PZ} . Sie ist abhängig vom Winkel zur polaren Achse [0001], also unterschiedlich für die einzelnen kristallografischen Richtungen [68]. In linearer Betrachtung ist das piezoelektrische Polarisationsfeld gegeben durch

$$\mathbf{P}_{PZ,ij} = \sum_{kl} e_{ijkl} \epsilon_{kl} \quad (2.12)$$

mit e_{ijkl} dem piezoelektrischen Tensor und ϵ_{kl} dem Verspannungstensor [44]. Für eine hexagonale Einheitszelle unter einer willkürlichen Verspannung und dem entsprechenden piezoelektrischen Tensor der Punktgruppe C_{6v}

$$e_{ij} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & e_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & e_{15} & 0 & 0 \\ e_{31} & e_{31} & e_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (2.13)$$

[64], ergibt sich dadurch

$$P_{PZ,[0001]} = e_{33}\epsilon_{\perp} + 2e_{31}\epsilon_{\parallel} \quad (2.14)$$

[44]. Dabei sind e_{31} und e_{33} die Elemente des piezoelektrischen Tensors, ϵ_{\perp} die Verspannung entlang der c-Achse und $\epsilon_{\parallel} = \epsilon_{xx} = \epsilon_{yy}$ die für das Wachstum in [0001] isotrop angenommenen Komponenten der planaren Verspannungen, wenn a_0 und c_0 die Gitterkonstanten des relaxierten Materials sind (Gleichung 2.6). Die e_{15} -Komponenten des piezoelektrischen Tensors in Gleichung 2.13 entsprechen der Polarisierung, die durch Scherspannungen hervorgerufen wird, welche, wie bereits erwähnt, beim Wachstum entlang [0001] als nicht vorhanden angenommen werden können.

Tabelle 2.1: Gitterkonstanten, spontane Polarisation, piezoelektrische Konstanten und elastische Konstanten der wurziten Gruppe-III-Nitride [70]. Die Piezokonstanten der zinkblende Verbindungen GaAs und ZnSe sind zum Vergleich ebenfalls angegeben [44].

	a_o [Å]	c_o/a_o	\mathbf{P}_{SP} [C/m ²]	e_{33} [C/m ²]	e_{31} [C/m ²]	C_{13} [GPa]	C_{33} [GPa]
GaN	3.197	1.6297	-0.034	0.67	-0.37	68	354
InN	3.580	1.6180	-0.042	0.81	-0.45	70	205
AlN	3.108	1.6033	-0.090	1.50	-0.62	94	377
GaAs				-0.12	0.06		
ZnSe				0.04	-0.02		

Ist jedoch $[1\bar{1}00]$ die Wachstumsrichtung, so sind die Verspannungen in der Wachstumsebene ϵ_{xx} und ϵ_{zz} nicht gleich. Da auch hier keine Scherspannungen auftreten, gilt für die piezoelektrische Polarisation in diesem Fall

$$P_{PZ,[1\bar{1}00]} = e_{33}\epsilon_{\perp} + e_{31}(\epsilon_{xx} + \epsilon_{zz}). \quad (2.15)$$

Die sich ergebende totale piezoelektrische Polarisation ist auch hier parallel zu $[0001]$, also gleich Null in Richtung $[1\bar{1}00]$.

Die Parameter in den obigen Gleichungen hängen in hohem Maße von den strukturellen Gegebenheiten, dem Verhältnis der Gitterkonstanten c/a und der Anion-Kation-Bindungslänge uc ab. Bereits kleine Differenzen in den Parametern führen zu deutlichen Änderungen der berechneten Polarisationskonstanten [69]. Bernardini *et al.* [44] bestimmten die Parameter erstmals durch die Berry-phase Theorie der Polarisation von Festkörpern. Diese weisen deutlich auf die polarisationsbezogenen Eigenschaften der III-V-Nitride hin, die sie klar von den standardzinkblende Halbleitern unterscheiden: (i) die riesigen piezoelektrischen Konstanten, wesentlich größer als bei den meisten III-V- und II-VI-Halbleitern (und mit entgegengesetztem Vorzeichen, zu allen anderen III-V-Halbleitern) und (ii) die Existenz einer spontanen Polarisation in der selben Größenordnung, wie sie bei Ferroelektrika vorkommt. In dieser Arbeit werden die in Tabelle 2.1 aufgeführten Daten verwendet. Sie entsprechen den 2001 aktualisierten Daten von Bernardini *et al.* [70].

2.1.3 Interne elektrostatische Felder in (Al,In,Ga)N-Quantengraben und der Quantenkonfined Stark-Effekt

Da Heterostrukturen im Regelfall verspannt gewachsene Schichtsysteme sind, führt eine elektrische Polarisation, wie sie in den wurziten Nitriden auftritt, bei konventionell $[0001]$ -gewachsenen Quantengraben, zu sehr hohen internen elektrostatischen Feldern senkrecht zur Quantengrabenebene. Dies wird im Folgenden näher betrachtet.

[0001]-orientierte Quantengraben Beim Wachstum entlang der polaren c-Achse ist die Wachstumsrichtung parallel zum Polarisationsvektor. Durch das abrupte Ändern der makroskopischen (\mathbf{P}_{SP} und \mathbf{P}_{PZ}) Polarisation kommt es zur Ansammlung von elektrischen Ladungen an den Grenz- oder Oberflächen der einzelnen Schichten. Bernardini *et al.* [43] studierten dies für ein GaN/AlN(0001)-Übergitter, das kohärent auf GaN(0001) gewachsen sein sollte. Die totale Polarisation des unverspannten GaN und des kohärent verspannten AlN führt zu Flächenladungen an den Grenzflächen mit alternierendem Vorzeichen. Diese Flächenladungen erzeugen dann interne elektrostatische Felder in den GaN- und AlN-Schichten. Die elektrischen Felder in den Quantengraben und Barrieren, hervorgerufen durch die spontane und die piezoelektrische Polarisation entlang der Wachstumsrichtung, ergeben sich für eine Übergitterstruktur aus

$$\begin{aligned} F_z^w &= \frac{P_{SP,z}^b + P_{PZ,z}^b - P_{SP,z}^w - P_{PZ,z}^w}{\epsilon^w + \epsilon^b L_w/L_b}, \\ F_z^b &= -\frac{L_w}{L_b} F_z^w \end{aligned} \quad (2.16)$$

[68]. Hierbei stehen w und b jeweils für Graben und Barriere. L entspricht der Schichtdicke und ϵ der relativen Dielektrizitätskonstante. In guter Näherung gelten die Gleichungen 2.16 auch für Mehrfachquantengrabenstrukturen. Selbstkonsistente Tight-Binding-Simulationen der Felder in solchen Heterostrukturen ergeben sehr hohe Werte im Bereich von mehreren MV/cm [71].

Als Folge der elektrostatischen Felder in den Quantengraben kommt es zu einer räumlichen Trennung der Elektronen- und Lochwellenfunktionen und ihrer Lokalisation an beiden Seiten des Quantengraben. Es ergeben sich zwei wichtige Konsequenzen: (i) die

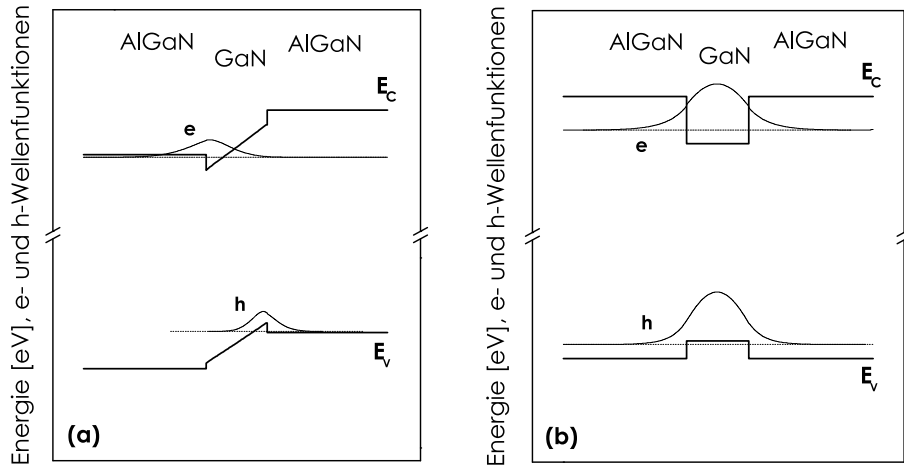


Abbildung 2.2: Schematischer Bandantenverlauf und Wellenfunktionen der Grundzustände von Elektron und Loch für einen GaN/AlGaIn-Quantengraben (a) mit piezoelektrischen Feld (QCSE) und (b) ohne piezoelektrisches Feld (Flachbandbedingungen).

Interband-Übergangsenergie verringert sich, es kommt zu einer Rotverschiebung der PL, dem QCSE, und (ii) die räumliche Trennung der Ladungsträger führt zu einer verringerten Überlappung ihrer Wellenfunktionen, was in einer reduzierten Übergangswahrscheinlichkeit resultiert und damit die strahlende Lebensdauer durch die reduzierte Oszillatorstärke verlängert. Abbildung 2.2(a) zeigt die Situation für einen einzelnen Quantengraben unter dem Einfluss eines piezoelektrischen Feldes. Je breiter ein Quantengraben ist, um so größer ist die räumliche Trennung der Ladungsträger und die Wirkung des QCSE.

[1 $\bar{1}$ 00]-orientierte Quantengräben Beim Wachstum auf der nichtpolaren (1 $\bar{1}$ 00)-Ebene [72] ist die Wachstumsrichtung senkrecht zur Richtung der totalen Polarisierung. Sowohl die spontane als auch die verspannungsinduzierte, piezoelektrische Polarisierung sind für diese Kristallrichtung gleich Null [68]. Daher können sich auch keine Grenzflächenladungen herausbilden. Elektrostatische Felder senkrecht zum Quantengraben, wie sie in konventionellen [0001]-orientierten Heterostrukturen auftreten, existieren somit in (1 $\bar{1}$ 00)-gewachsenen Quantengräben nicht [73]. Es herrschen Flachbandbedingungen vor (Abb. 2.2(b)). Die für die [0001]-Strukturen genannten Konsequenzen interner Felder treten nicht auf.

2.1.4 Lokalisationseffekte durch Fluktuationen der In-Gehaltes in InGaN-Quantengräben

Wie bereits erwähnt, werden in der Literatur auch Fluktuationen des In-Gehaltes in den ternären InGaN-Mischkristallen als Ursachen für einige der besonderen optischen Eigenschaften dieses Materialsystems diskutiert. Sie bewirken ähnliche und nur schwer voneinander zu trennende Effekte, wie die durch die elektrostatischen Felder hervorgerufenen. Bei Standardtemperaturen für das MBE-Wachstum von InGaN ist der Gleichgewichtsdampfdruck von InN um Größenordnungen größer als der von GaN und die Löslichkeit von In in GaN wird mit unter 6% angegeben [74]. Deshalb hat In einen sehr geringen Haftungskoeffizienten bei diesen Temperaturen. Um die Dissoziation von InN zu erreichen, muss die Temperatur deutlich reduziert werden. Dadurch können sich In-Tropfen herausbilden, welche wiederum als Senken für InN wirken und den Einbau von höheren In-Gehalten in den Film verhindern. Da weiterhin der große Unterschied der Gitterkonstanten zwischen InN und GaN zu hoch verspannten InGaN-Mischkristallen führt, kann eine Separation der Phasen bei den relativ geringen Wachstumstemperaturen, wie sie beim MBE-Wachstum der Nitride benötigt werden, auftreten [75]. Sowohl von Zusammensetzungsschwankungen als auch von der Bildung reiner InN-Bereiche in den Schichten ist bereits berichtet worden [76, 53, 54, 77, 78]. Dabei wird für dünne Quantengräben im Bereich des effektiven Bohrradius (< 3 nm) und hohem In-Gehalt der Lokalisationseffekt von Exzitonen an lokalen, indiumreichen Gebieten als dominant gesehen, der Einfluss der piezoelektrischen Felder auf die PL als bestimmend für die PL-Mechanismen bei größeren Gräben mit geringerem In-Gehalt. Für den Übergangsbereich sind gleichsam beide Mechanismen in Betracht zu ziehen. [52, 55]

Exzitonen werden an solchen Bereichen mit gegenüber der Umgebung höherem In-Gehalt

lokalisiert, da diese Potenzialsenken darstellen. Eine gegenüber der Umgebung reduzierte Übergangsenergie und eine bezogen auf freie Exzitonen verringerte Übergangsrate [79] wären die Folge. Diese beiden Effekte entsprechen denen, die auch durch die elektrostatischen Felder in den Proben erklärt werden können.

2.2 Die Situation im Halbleiter in Abhängigkeit von der Dichte der induzierten Ladungsträger

Da die durch optische (oder auch thermische bzw. elektrische) Anregung induzierten Ladungsträger in einem Halbleiter Vielteilchen-Effekte hervorrufen, beeinflusst ihre Menge und die dadurch unterschiedliche Coulomb-Wechselwirkung natürlich seine Bandstruktur. Abbildung 2.3 zeigt schematisch die Situation zwischen Valenz- und Leitungsband bei unterschiedlich hohen Dichten n_{exc} der induzierten Ladungsträger.

Bei geringen Intensitäten des Anregungslichtes (Abb. 2.3(b)) bindet sich bei tiefen Temperaturen ein Teil der erzeugten Elektronen und Löcher durch die Coulombkräfte zu den sogenannten Exzitonen (X). Sie liegen dann, um die Exzitonenbindungsenergie reduziert, energetisch unterhalb der Bandlücke. Mit größer werdender Zahl der Ladungsträger in Valenz- und Leitungsband füllen sich die Bänder zunehmend. Es bildet sich (innerhalb der Lebensdauer der Ladungsträger) ein Elektron-Loch-Plasma heraus, ähnlich einem Elektron-Ion-Plasma, welches aus der Plasmaphysik bekannt ist. Die Auffüllung der

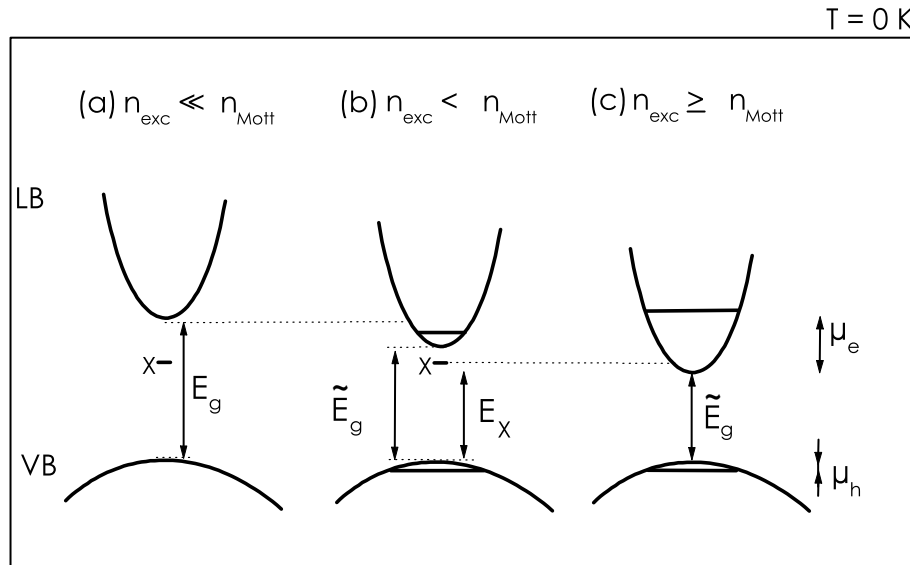


Abbildung 2.3: Schema zur Erläuterung von Bandlückenrenormalisierung und Bandfüllung eines 2D-Elektron-Loch-Plasmas für $T = 0 \text{ K}$. LB und VB bezeichnen Leitungs- und Valenzband, X das Exziton, E_g und \tilde{E}_g sind die Bandlücken bei sehr niedriger (a), mittlerer (b) und sehr hoher Anregung (c), μ_e und μ_h die chemischen Potentiale für Elektronen und Löcher. Wenn $n_{exc} \geq n_{Mott}$ ist $\tilde{E}_g \leq E_X$. Es existieren keine Exzitonen mehr (c).

Bänder mit Elektronen und Löchern folgt entsprechend der Fermistatistik, und μ_e und μ_h , die chemischen Potenziale, werden im Allgemeinen auch durch die Fermi-Niveaus F_e und F_h beschrieben. Wenn die Oberkante des Valenzbandes als Bezugspunkt genommen wird, entspricht $\mu_e = F_e - \tilde{E}_g$ und $\mu_h = F_h$. Für den zweidimensionalen Fall (bei $T = 0$ K) ergibt sich demzufolge die Dichte N der existierenden Ladungsträger bei konstanter Zustandsdichte aus

$$N = \frac{m^*}{\pi \hbar^2} \int_0^\infty f(E) dE = \frac{m^*}{\pi \hbar^2} F. \quad (2.17)$$

Entsprechend der effektiven Massen m^* der Elektronen bzw. Löcher lassen sich bei Kenntnis der vorhandenen Ladungsträgerdichte hieraus μ_e bzw. μ_h ermitteln.

Neben dem Füllen der Bänder kommt es, aufgrund der jeweiligen Coulomb-Wechselwirkungen zwischen den Ladungsträgern untereinander, den Elektronen im Leitungs- und den Löchern im Valenzband, zu einer Reduzierung der Bandlücke - der sogenannten Bandlückenrenormalisierung (BGR)⁴. Die Übergangsenergie der Rekombination eines freien Elektron-Loch-Paares verschiebt sich ins Niederenergetische.

Wenn die Dichte der erzeugten Ladungsträger weiter zunimmt, reduziert sich die Bandlücke immer mehr. Im Gegensatz dazu verändert sich die Energie der Exzitonen E_X praktisch nicht. Hat sich die Bandlücke um einen Wert größer/gleich der Exzitonenbindungsenergie verringert, $\tilde{E}_g \leq E_X$, (s. Abb. 2.3(c)), können keine Exzitonen mehr existieren, die Rekombination von Ladungsträgern erfolgt nur noch aus dem Elektron-Loch-Plasma heraus. Die Ladungsträgerdichte, bei der die Reduktion der Bandlücke dem Wert der Exzitonenbindungsenergie entspricht, bezeichnet man als die Mottsdichte n_{Mott} .

Die Betrachtung der jeweiligen Situation der Ladungsträgerdichte ist also notwendig, um die experimentellen Ergebnisse richtig zu interpretieren. Im Folgenden werden die Mottsdichte für die GaN-Proben diskutiert und anschließend die einzelnen Experimente ihr bezüglich eingeordnet.

2.2.1 Abschätzung der Mottsdichte und Vergleich mit den experimentellen Gegebenheiten

Abschätzung der Mottsdichte für die GaN-Heterostrukturen

Die Größe der Mottsdichte für ein Materialsystem kann aus der oben genannten Gleichstellung der Energiedifferenz, um die die Bandlücke reduziert ist, und der exzitonenischen Bindungsenergie, $\Delta E_g = E_x^b$, bestimmt werden. Es soll deshalb die BGR näher betrachtet werden. Da die Breite der Quantengräben der in der Arbeit untersuchten Proben im Bereich von 3 nm bis 6 nm, also in der Größenordnung des Bohrradius liegt, sind die in der Literatur vorhandenen Abschätzungen für die idealen zwei- (2D) und dreidimensionalen (3D) Fälle, nur bedingt auf unsere Proben anwendbar. Aus diesem Grund, als Grenzfallbetrachtung zwischen 2D und 3D, werden hier beide Situationen abgeschätzt. Es ist zu erwähnen, dass beide Idealisierungen nur für undotierte Halbleiter gelten. Zwar besitzen die Proben eine Hintergrunddotierung im Bereich von $n_0 \approx 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ (s. Abschnitt 3),

⁴BGR - engl. *Band Gap Renormalization*

als Werkzeug der Abschätzung können beide Betrachtungen trotzdem verwendet werden. Da die experimentellen Untersuchungen stets bei einer Temperatur von 5 K durchgeführt wurden, wird sich hier auf die Situation $T = 0$ K beschränkt.

Nach Zimmermann [80] ergibt sich die Energieverschiebung der Bandlücke im Volumenhalbleiter (3D) aus

$$\Delta E_g = \tilde{E}_g - E_g = -C \left(\frac{4}{3} \pi \right)^{\frac{1}{4}} N^{\frac{1}{4}} a_{Bx}^{\frac{3}{4}} E_x^b, \quad (2.18)$$

mit N , der Dichte der Elektronen-Loch-Paare, dem Bohrradius und der Bindungsenergie des Exzitons im Volumenmaterial, a_{Bx} und E_x^b sowie $C = 3.24$. Setzt man jetzt $-\Delta E_g = E_x^b$, ergibt sich für den Fall mit $N = n_{Mott,3D}$ die Mottdichte

$$n_{Mott,3D} = \frac{3}{C^4 4 \pi} a_{Bx}^{-3}. \quad (2.19)$$

Mit $a_{Bx} = 3$ nm [36] folgt daraus also $n_{Mott,3D} \approx 10^{17} \text{ cm}^{-3}$.

Für einen 3 nm breiten Quantengraben, wie er bei der InGaN-Probe mit den schmalen Gräben vorliegt (und wo der Einfluss der Piezofelder auf eine räumliche Trennung der Elektronen und Löcher vergleichsweise gering ist) kann damit eine 2D-Mottdichte von $n_{Mott,2D} \approx 3 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ abgeschätzt werden⁵.

Nach Schmitt-Rink *et al.* [81] ist die Reduktion der Bandlücke für ein 2D-Elektron-Loch-Plasma bei $T = 0$ K gegeben durch

$$\Delta E_g = \tilde{E}_g - E_g = -3.1(Na_0^2)^{1/3} E_{x,2D}. \quad (2.20)$$

Dabei sind $a_0 = a_{Bx}/2$ der Exzitonen-Bohrradius und $E_{x,2D} = 4E_x^b$ die Exzitonenbindungsenergie für den idealen 2D-Fall.

Setzt man jetzt wieder $-\Delta E_g = E_{x,2D}$, ergibt sich hier nun für den Fall $N = n_{Mott,2D}$ die Mottdichte

$$n_{Mott,2D} = \frac{1}{3.1^3} a_0^{-2}. \quad (2.21)$$

Man erhält demzufolge also eine 2D-Mottdichte von $n_{Mott,2D} \approx 10^{12} \text{ cm}^{-2}$.

Mit den beiden Betrachtungen für die Idealfälle 2D und 3D lässt sich für die hier untersuchten Heterostrukturen eine ungefähre Mottdichte im Bereich von 10^{11} cm^{-2} pro Quantengraben abschätzen.

Aus der Literatur können für die Mottdichte von GaN nur sehr wenige Informationen gewonnen werden. So bestimmten Binet *et al.* [82] die Mottdichte für Volumen-GaN aus der energetischen Lage der Lumineszenz im PL-Spektrum in Abhängigkeit von der Ladungsträgerdichte. Sie ermittelten die Ladungsträgerdichte $N = n_{Mott,3D} = 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ($T = 30$ K), ab der die renormalisierte Bandlücke kleiner wird als die exzitonsche Übergangsenergie. Es beginnt somit eine Rotverschiebung der Lumineszenzenergie mit

⁵Geringe Änderungen der Grabenbreite, entsprechend der 5.9 nm bzw. 5 nm breiten Quantengräben führen nur zu einer geringfügigen Variation von n_{Mott} .

weiter steigender Dichte. Ebenfalls im Dichtebereich von 10^{18} cm^{-3} liegt der von Bidnyk *et al.* [83, 84] experimentell ermittelte Wert der Mottsdichte ($1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$), die temperaturabhängig den Gewinnmechanismus von Volumen-GaN in Abhängigkeit der induzierten Ladungsträgerdichte untersuchten. Sie nahmen den Übergang von Exziton-Exziton-Streuung zum Elektron-Loch-Plasma als Indiz für die erfolgte Dissoziation der Exzitonen (also das Erreichen der Mottsdichte).

Die für Volumen-GaN angegebenen Mottsdichten beider Arbeiten liegen etwa eine Größenordnung oberhalb der hier nach Gleichung 2.19 für den 3D-Fall rechnerisch bestimmten Dichte.

Einordnung der experimentellen Gegebenheiten der einzelnen Untersuchungen entsprechend der induzierten Ladungsträgerdichte

Die Einordnung der experimentellen Ergebnisse nach der jeweils induzierten Ladungsträgerdichte bezüglich der oben abgeschätzten Mottsdichte ist gleichzeitig auch eine Unterteilung der Studien dieser Arbeit in die Untersuchung zweier unterschiedlicher Rekombinationsmechanismen. Unterhalb n_{Mott} („Niederdichtebereich“) ist von exzitonischer Rekombination, oberhalb n_{Mott} („Hochdichtebereich“) von der Rekombination eines Elektron-Loch-Plasmas auszugehen.

Die generierte Ladungsträgerdichte pro Quantengraben Für die Abschätzung der in den Quantengraben erzeugten Ladungsträger soll vereinfachend eine Rechteckform des Anregungsimpulses angenommen werden.

Die jeweils in den Versuchen pro Impuls generierte Ladungsträgerdichte n_{eh} ergibt sich aus der gemessenen Intensität⁶ des Anregungsimpulses I_0 in Abhängigkeit seiner Länge τ_L und der Lebensdauer der Elektronen-Loch-Paare τ_{eh} nach

$$n_{eh}(\tau_L) = \frac{I_0 (1 - R)}{\hbar\omega} \int_0^{\tau_L} \frac{I_{exc}(t)}{I_0} e^{-\frac{\tau_L-t}{\tau_{eh}}} dt , \quad (2.22)$$

wobei mit $R = (1 - n)^2 / (1 + n)^2$ die Reflexionsverluste an der Probenoberfläche (Brechungsindex n) berücksichtigt werden und $\hbar\omega$ der Anregungsenergie entspricht. Unter der Näherung, dass die gesamte Energie des Anregungsimpulses gleichmäßig über seine Dauer auf die Probe übertragen wird ($I_{exc}(t)/I_0 = 1$ für $0 < t < \tau_L$), also ein Rechteckimpuls angenommen werden kann, ergibt sich daraus, mit N_w der Zahl der Quantengraben, eine Ladungsträgerdichte pro Graben von

$$n_{eh}(QW) = \frac{1}{N_w} \frac{I_0(1 - R)}{\hbar\omega} \tau_{eh} \left(1 - e^{-\frac{\tau_L}{\tau_{eh}}} \right) . \quad (2.23)$$

Je nach Dauer des Anregungsimpulses folgen daraus zwei unterschiedliche Näherungsmöglichkeiten.

⁶Die Reflexionsverluste an den optischen Elementen und den Eintrittsfenstern der Kryostaten sind dabei zu berücksichtigen.

Ist $\tau_L \ll \tau_{eh}$, vereinfacht sich Gleichung 2.23 zu

$$n_{eh}(QW) = \frac{1}{N_w} \frac{I_0 (1 - R)}{\hbar\omega} \tau_L . \quad (2.24)$$

Diese Situation liegt für die zeitabhängigen Messungen unter ps-Anregung vor. Der Term $I_0\tau_L$ entspricht dabei der Impulsenergie, der Energie pro Fläche, die mit jedem Anregungsimpuls auf die Probe übertragen wird.

Im umgekehrten Fall mit $\tau_L \gg \tau_{eh}$ folgt aus Gleichung 2.23

$$n_{eh}(QW) = \frac{1}{N_w} \frac{I_0 (1 - R)}{\hbar\omega} \tau_{eh} . \quad (2.25)$$

Da bei einigen Messungen die Impulslänge in der Größenordnung der Lebensdauer der Elektron-Loch-Paare lag, kann hier nicht von einem der beiden Extremfälle ausgegangen werden. In Gleichung 2.24 muss τ_L durch $C\tau_{eh}$ ersetzt werden, mit C dem entsprechenden Proportionalitätsfaktor

$$n_{eh}(QW) = \frac{1}{N_w} \frac{I_0 (1 - R)}{\hbar\omega} C \tau_{eh} . \quad (2.26)$$

Für den Sonderfall $\tau_L = \tau_{eh}$ beispielsweise beträgt $C = 0.63$.

Die Fälle $\tau_L \gg \tau_{eh}$ und $\tau_L \approx \tau_{eh}$ sind insoweit von Bedeutung, dass hier berücksichtigt werden muss, dass noch während der Erzeugung der Elektron-Loch-Paare (durch den Laserimpuls) bereits wieder eine Rekombination der Ladungsträger stattfinden kann und sich so eine geringere Ladungsträgerdichte einstellt als im Fall $\tau_L \ll \tau_{eh}$.

Andersherum tritt möglicherweise noch ein weiterer Effekt auf. Wenn die Lebensdauer der Ladungsträger größer ist als der zeitliche Abstand zwischen zwei aufeinanderfolgenden Anregungsimpulsen, ergibt sich die Gesamtmenge der im HL existierenden Ladungsträger aus der Summe der durch den letzten Laserimpuls erzeugten Ladungsträger und den bereits existierenden Trägern, die durch vorangegangene Anregungsimpulse generiert wurden. Diesen Effekt gilt es u. U. bei dem Vergleich von unterschiedlichen Proben zu beachten.

Entsprechend der Betrachtungen in diesem Abschnitt wurden für die Untersuchungen der Proben experimentelle Bedingungen mit angeregten Ladungsträgerdichten sowohl unter als auch oberhalb der Mottdichte gewählt. Es ergibt sich folgende Einordnung der einzelnen Untersuchungen in dieser Arbeit: Die Charakterisierungen in Abschnitt 4.1 und die Untersuchungen des dichteabhängigen Abklingverhaltens der InGaN/GaN-Proben in Abschnitt 4.2.1 sind unterhalb der Mottdichte durchgeführt worden. Es ist in diesen Fällen also von der Rekombination von Exzitonen auszugehen. Bei der zeitaufgelösten Untersuchung der PL-Spektren der InGaN-Proben in Abschnitt 4.2.1 und bei allen folgenden Studien wurden Bedingungen erreicht, in denen die Exzitonen vollständig dissoziiert sein sollten. Es ist hier von der Rekombination eines Elektron-Loch-Plasmas auszugehen.

2.3 Optischer Gewinn in Halbleitern

Die bekannteste Beschreibung der Wechselwirkungen zwischen elektromagnetischer Strahlung und Elektronen in einem Halbleiter basiert auf den von Einstein 1917 aufgestellten Beziehungen für ein 2-Niveausystem (beispielsweise [85]). Sie verknüpft die beiden strahlenden Übergangsprozesse zwischen zwei Energieniveaus, spontane und stimulierte Emission, und die Absorption miteinander. Die entsprechenden Vorgänge in einem Halbleiter lassen sich sehr einfach aus diesen Betrachtungen ableiten, indem man sie beispielsweise für ein Kontinuum an Zuständen, wie es in Valenz- und Leitungsband existiert, konkretisiert. Im Folgenden sollen diese Vorgänge und die Beschreibung des optischen Gewinnes genauer erläutert werden, da wie später zu sehen ist (Abschnitt 4.3), die Band-zu-Band-Rekombination den Mechanismus der stimulierten Emission in den hier untersuchten Proben darstellt. Ein solcher Übergang erfolgt unter Erhaltung des \mathbf{k} -Vektors.

Generell muss die Zahl der stimulierten Übergänge von einem höheren (E_2) zu einem tieferen (E_1) Energieniveau größer sein als die Absorptionsübergänge, um den Effekt der optischen Verstärkung von Photonen zu erreichen. In einem Halbleiter würden dabei E_2 und E_1 Energiezuständen im Leitungs- bzw. im Valenzband entsprechen. Die Übergangsraten für spontane Emission, stimulierte Emission und Absorption $S_{21(sp)}$, $S_{21(st)}$ und S_{12} ergeben sich mit den Besetzungswahrscheinlichkeiten der Energien E_1 und E_2 , f_1 und f_2 aus

$$S_{21(sp)} = A_{21}f_2(1 - f_1), \quad (2.27)$$

$$S_{21(st)} = B_{21}f_2(1 - f_1)\rho(E_{21}), \quad (2.28)$$

$$S_{12} = B_{12}f_1(1 - f_2)\rho(E_{21}). \quad (2.29)$$

Hierbei sind A_{21} und B_{21} die Übergangswahrscheinlichkeiten der spontanen und der stimulierten Emission und B_{12} die der Absorption. $\rho(E_{21})$ entspricht der Dichte der Photonen mit der Übergangsenergie $E_{21} = E_2 - E_1$. Die Funktionen f_1 und f_2 sind die Fermi-Dirac-Funktionen

$$\begin{aligned} f_1 &= \frac{1}{\exp[(E_1 - F_1)/k_B T] + 1}, \\ f_2 &= \frac{1}{\exp[(E_2 - F_2)/k_B T] + 1}, \end{aligned} \quad (2.30)$$

mit

$$E_1(\hbar\omega) = -(\hbar\omega - E_g)\frac{m^*}{|m_1|} \quad \text{und} \quad E_2(\hbar\omega) = E_g + (\hbar\omega - E_g)\frac{m^*}{m_2}. \quad (2.31)$$

Dabei ist $m^* = (|m_1|m_2)/(|m_1| + m_2)$ mit m_1 und m_2 den jeweiligen Massen in Valenz- und Leitungsband. F_1 und F_2 sind die quasi-Fermi-Niveaus für beide Bänder.

Analog der Betrachtungen für ein 2-Niveau-System erhalten wir für den stationären Fall ($-S_{21(sp)} - S_{21(st)} + S_{12} = 0$) und mit $F_1 = F_2$ (thermisches Gleichgewicht) die sogenannten

Einsteingleichungen

$$B_{21} = B_{12}, \quad (2.32)$$

$$\frac{A_{21}}{B_{21}} = \frac{n_R^3 E_{21}^2}{\pi^2 \hbar^3 c^3}. \quad (2.33)$$

Dabei entspricht c/n_R der Ausbreitungsgeschwindigkeit des Lichtes im Halbleiter. Für die Lasingeigenschaften ist die stimulierte Emission von besonderer Bedeutung. Ihre Voraussetzung ist die Existenz der sogenannten Besetzungsinversion

$$S_{21(st)} > S_{12} \quad (2.34)$$

bzw. entsprechend Gleichung 2.32

$$f_2(1 - f_1) > f_1(1 - f_2) \quad \text{bzw.} \quad F_2 - F_1 > E_2 - E_1 = \hbar\omega. \quad (2.35)$$

Gleichung 2.34 deutet den Zusammenhang zwischen Absorption und optischem Gewinn bereits an. Der Absorptionskoeffizient $\alpha(E_{21})$ ergibt sich aus der sogenannten Nettoabsorptionsrate $r_{12(abs)} = S_{12} - S_{21(st)}$ dividiert durch den Photonenfluss $\rho(E_{21})c/n_R$. Zusammen mit Gleichung 2.33 entsteht folgender Ausdruck

$$\alpha(E_{21}) = \frac{\pi^2 \hbar^3 c^2}{E_{21}^2 n_R^2} A_{21} (f_2 - f_1) = \frac{\pi^2 \hbar^3 c^2}{E_{21}^2 n_R^2} r_{st}(E_{21}). \quad (2.36)$$

Hierbei ist $r_{st}(E_{21})$ die Rate der stimulierten Emission.

Aus Gleichung 2.36 und dem sich ergebenden Zusammenhang zwischen $r_{st}(E_{21})$ und der spontanen Emissionsrate $r_{sp}(E_{21}) = S_{21(sp)}$ folgt bei Photonenenergien $\Delta F > \hbar\omega$ ein negativer Absorptionskoeffizient, welcher als der Gewinn $g(\hbar\omega)$ bezeichnet wird. Es gilt demnach

$$g(\hbar\omega) = -\alpha(\hbar\omega) = \frac{\pi^2 \hbar^3 c^2}{E^2 n_R^2} r_{st}(\hbar\omega) = \alpha_0(\hbar\omega) [f_2(E_2) - f_1(E_1)]. \quad (2.37)$$

Die Konstante α_0 entspricht der Absorption am absoluten Nullpunkt und $f_2 - f_1$ beinhaltet den Einfluss der Temperatur und des Anregungsniveaus auf den Gewinn. Über die Koeffizienten B_{12} und A_{21} flossen bereits im Vorfeld die Materialparameter des untersuchten Halbleiters in diese Betrachtung.

Aus Gleichung 2.37 kann das Gewinnspektrum sowohl berechnet, als auch grafisch ermittelt werden (beispielsweise [85]). In Abschnitt 3.2.3 wird die in dieser Arbeit verwendete experimentelle Methode zu Bestimmung des Gewinnspektrums erläutert. Eine ausführliche Diskussion der Ergebnisse folgt in den Abschnitten 4.3 und 4.4.

2.4 Dielektrische Wellenführung in Heterostrukturen

Bei der stimulierten Emission von Licht wird angestrebt, dass die emittierte elektromagnetische Welle eine möglichst große Wechselwirkung mit dem invertierten Medium, also der aktiven Schicht, erfährt. Deshalb ist für die Konstruktion beispielsweise einer

kantenemittierenden Laserdiode⁷ die Realisierung einer effektiven Führung der sich ausbreitenden Welle unumgänglich. Das bedeutet, dass durch ein gezieltes Beeinflussen der optischen und elektrischen Eigenschaften von Quantengraben und Barrieren die Wellenführung optimiert werden kann. Dies wird im Allgemeinen als *optical confinement* bezeichnet. Eine nur schwache Wellenleitung führt zu einer nur geringen Überlagerung der elektromagnetischen Welle mit der aktiven Schicht und damit zu einer verminderten Wechselwirkung. Durch das Eindringen der Welle in die die aktive Schicht umgebenden Medien also z. B. in die Pufferschicht oder das Substrat kann es zusätzlich zu einer Absorption und damit einem Intensitätsverlust kommen.

Auch ohne eine gezielte Beeinflussung erfährt die sich ausbreitende Welle eine gewisse Wellenführung, da beispielsweise ein Brechungsindexunterschied zwischen der aktiven Schicht und den Barrieren existiert. Die aktuelle Situation der Wellenleitung in einer Heterostruktur ist deshalb entscheidend für die realen Eigenschaften einer Probe. Im Abschnitt 4.4 wird die Situation für die einzelnen Proben und ihre Auswirkung auf die experimentellen Ergebnisse diskutiert. Deshalb sollen kurz die grundlegenden Zusammenhänge der Wellenführung in Heterostrukturen am Beispiel eines Dreischichtsystems mit einer mittleren, aktiven Schicht (Brechungsindex n_2) und den inaktiven Barrieren ($n_1 < n_2, n_3 < n_2$) gegeben werden.

Die Ausbreitung elektromagnetischer Wellen wird durch die Maxwell'schen Gleichungen beschrieben. Eine sich transversal ausbreitende, elektrische Welle (TE) ist senkrecht zur Ausbreitungsrichtung z polarisiert, also ist $\mathcal{E}_z = 0$. Unter der Annahme eines in Richtung y unendlichen Wellenleiters ist $\partial/\partial y = 0$. Die sich damit für $\mathcal{E}_y = f(x, z, t)$ ergebene Wellengleichung lautet

$$\frac{\partial^2 \mathcal{E}_y}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \mathcal{E}_y}{\partial z^2} = \mu_0 \epsilon \frac{\partial^2 \mathcal{E}_y}{\partial t^2} , \quad (2.38)$$

mit μ_0 der Permeabilität und ϵ der Dielektrizitätskonstante. Durch „Separation der Variablen“ ergibt sich

$$\frac{\partial^2 \mathcal{E}_y}{\partial x^2} + \mathcal{E}_y (n^2 k_0^2 - \beta^2) = 0 , \quad (2.39)$$

mit $\omega^2 \mu_0 \epsilon = n^2 k_0^2$ und β der Separationskonstanten.

Um die Konstante β zu ermitteln, wird die Grenzbedingung an den Grenzflächen der aktiven Schicht zu den sie umgebenden Medien genutzt. Hier muss die Tangentialkomponente des magnetischen Feldes in z Richtung stetig sein. Die Lösung von Gleichung 2.39, die sowohl numerisch als auch grafisch erfolgen kann, lässt im Allgemeinen mehrere diskrete Lösungen (TE_m -Wellen mit der sogenannten Modenzahl $m = 0, 1, 2, \dots$) zu. In den hier vorliegenden Fällen von asymmetrischen Wellenleitern (s. Probenbeschreibungen in Abschnitt 3) erfolgte sie mit der im Abschnitt 4.4 beschriebenen Software [86].

⁷Die Situation eines vertikal zur Oberfläche emittierenden Lasers (eines sogenannten VCSELs) soll im Folgenden nicht weiter betrachtet werden.

Kapitel 3

Experimentelle Grundlagen

3.1 Die verwendeten Proben

Der folgende Abschnitt stellt die in der Dissertation untersuchten Heterostrukturen vor. Dabei handelt es sich zum einen um zwei InGaN/GaN-Mehrfachquantengraben mit unterschiedlicher Grabenbreite und zum anderen um zwei GaN/AlGaN-Quantengrabenstrukturen mit unterschiedlicher kristallografischer Orientierung. Alle Proben besitzen eine hexagonale Kristallstruktur und sind im Paul-Drude-Institut für Festkörperelektronik Berlin (PDI) mittels plasma-assistierter MBE hergestellt worden. Dazu diente ein modifiziertes Riber-32-System mit konventionellen Effusionszellen für Ga, In und Al und einer Radiofrequenz-Stickstoff-Plasmaquelle. Das Wachstum wurde dabei in-situ mittels RHEED überwacht und anschließend mit HRXRD (*engl. High-Resolution XRD*) und Ramanstreuexperimenten charakterisiert. Detaillierte optische Untersuchungen der gewachsenen Strukturen erfolgten im Rahmen dieser Dissertation.

3.1.1 InGaN/GaN 10-fach Quantengrabenstrukturen auf SiC

Die untersuchten InGaN-Proben wurden auf Si-terminiertem 6H-SiC(0001) c-orientiert gewachsen, wobei ungefähr $1\text{ }\mu\text{m}$ GaN(0001) in beiden Proben die Pufferschicht bildet. Wie in Abb. 3.1 schematisch dargestellt, bestehen beide Heterostrukturen aus 10 Perioden von $(3.1\text{ nm In}_{0.17}\text{Ga}_{0.83}\text{N})/(12.1\text{ nm GaN})$ bzw. $(5.9\text{ nm In}_{0.16}\text{Ga}_{0.84}\text{N})/(8.8\text{ nm GaN})$. Die oberste Barriere bildet gleichzeitig die Probenoberseite. Die Hintergrunddotierung beider Proben liegt bei $n_0 \approx 1 \times 10^{17}\text{ cm}^{-3}$. [65]

Wie man den Angaben entnehmen kann, haben beide Proben nahezu identische Quantengrabenperioden (15 nm) und In-Gehalte in den Gräben ($\sim 16\%$). Somit sind diese Strukturen ideal für die Untersuchung der elektrostatischen Felder geeignet, da nur die Grabenbreite variiert.

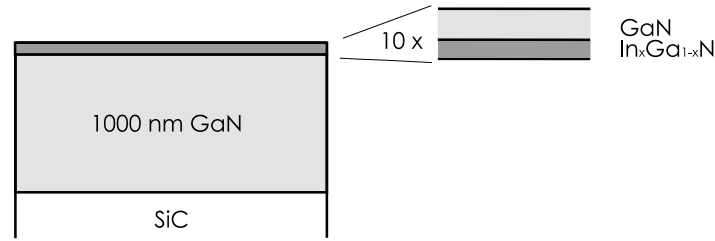
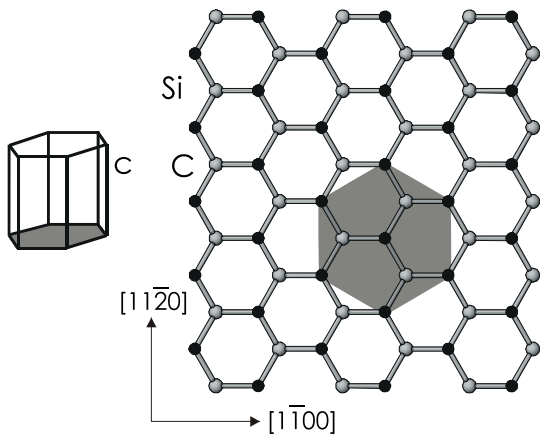


Abbildung 3.1: Schematischer Aufbau der zwei InGaN/GaN 10fach-Quantengrabenstrukturen mit 3.1 nm bzw. 5.9 nm Grabenbreite und 12.1 nm bzw. 8.8 nm Barrierenbreite. Der Indium-Gehalt in den Gräben betrug 16% bzw. 17%.

3.1.2 GaN/AlGaN 15-fach Quantengrabenstrukturen auf SiC und γ -LiAlO₂

Die in den [0001]-orientierten Gruppe-III Nitrid-Heterostrukturen existierenden großen pyro- und piezoelektrischen Felder und ihre Ursachen sind in Abschnitt 2 ausführlich beschrieben worden. Mit der Realisierung [1 $\bar{1}$ 00]-orientierter GaN/AlGaN-Heterostrukturen auf einem für die Nitride neuen Substrat durch Waltereit *et al.* [42] bot sich nun erstmals die Möglichkeit, Untersuchungen an einem neuartigen, [1 $\bar{1}$ 00]-orientierten Mehrfachquan-

(a) Konventionelle C-Flächenorientierung
GaN(0001)/6H-SiC(0001)



(b) Neue M-Flächenorientierung
GaN(1 $\bar{1}$ 00)/ γ -LiAlO₂(100)

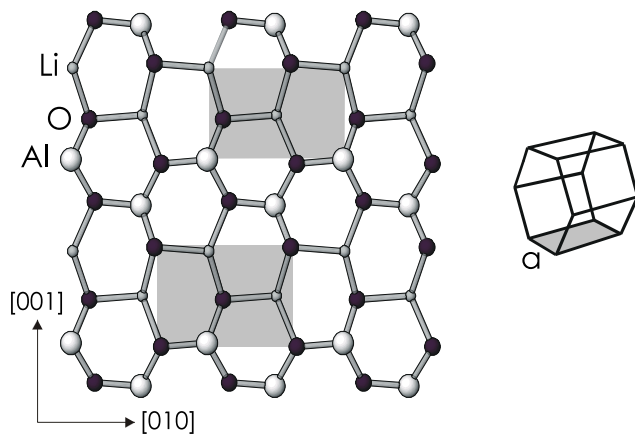


Abbildung 3.2: Die hexagonale GaN-Einheitszelle und Gittermodelle für das Wachstum von GaN auf (a) SiC(0001) und (b) γ -LiAlO₂(100). Die schattierten Flächen zeigen die jeweiligen Keimbildungsplätze. Das obere und das untere Rechteck in (b) zeigen die Anlagerungsplätze bestehend aus Kationen bzw. Anionen.

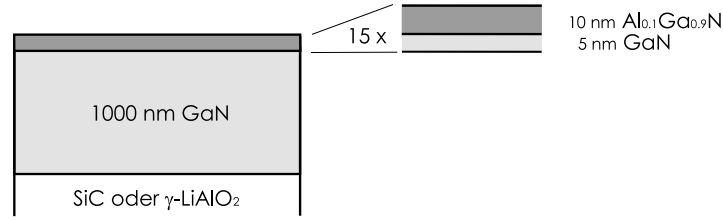


Abbildung 3.3: Schema der beiden identisch aufgebauten GaN/AlGaN-15fach-Quantengrabenstrukturen. Die Probe auf SiC ist wie üblich [0001]-orientiert, die Probe auf γ -LiAlO₂ ist senkrecht dazu, in Richtung [1 $\bar{1}$ 00] gewachsen.

tengraben *ohne* den Einfluss dieser Felder durchzuführen.

Die üblicherweise verwendeten Substrate Saphir und SiC(0001) bieten Hexagons als Keimbildungsplätze für die hexagonale Basisfläche des GaN (siehe Abb. 3.2(a)). Im Gegensatz dazu passt die (100)-Fläche des γ -LiAlO₂ sehr gut für die rechteckige M-Fläche der GaN-Einheitszelle (Abb. 3.2(b)). Die Gitterfehlانpassung beträgt hier sogar nur 1 bis 2% gegenüber 3.4% bei Wachstum auf 6H-SiC(0001) [40, 42].

Bei den hier untersuchten Proben handelt es sich um je eine GaN/AlGaN-Mehrfachquantengrabenstruktur, gewachsen auf γ -LiAlO₂(100) bzw. auf 6H-SiC(0001). Beide Proben sind, abgesehen von der Orientierung, identisch aufgebaut und bestehen aus einer 1 μ m GaN-Pufferschicht und 15 Perioden von jeweils 5 nm GaN und 10 nm Al_{0.1}Ga_{0.9}N. Sie sind schematisch in Abb. 3.3 dargestellt. Auch bei diesen Proben ist die oberste Barriere gleichzeitig die jeweilige Deckschicht. Die Hintergrunddotierung der auf γ -LiAlO₂(100) gewachsenen Probe liegt bei $n_0 \approx 5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, während der Wert für die Probe auf SiC $n_0 \approx 1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ beträgt.

Die Orientierung der Wachstumsebene und die Phasenreinheit sind durch Ramanstreuexperimente überprüft worden, die bei Raumtemperatur mit der 514.5 nm Linie eines Argonionenlasers in Rückstreugeometrie durchgeführt wurden [87]. Im Falle der [0001]-orientierten Probe (keine Abbildung) ist für alle Orientierungen des elektromagnetischen Feldvektors (\mathbf{E}) in der Probenebene das gleiche Spektrum mit der dominierenden E_2 -Phononmode bei 566 cm^{-1} detektiert worden (Anregung und Detektion entlang der c-Achse). Dies liegt daran, dass die C-Probe in der Wachstumsebene isotrop ist.

Die GaN(1 $\bar{1}$ 00)-Ebene ist dagegen anisotrop. Deshalb wurden drei verschiedene Geometrien in der Probenebene untersucht. x und z bezeichnen dabei Richtungen von \mathbf{E} in der Ebene ($x \perp z$) und y die Oberflächennormale. Abbildung 3.4 zeigt die Ramanspektren der M-Probe für diese drei Streukonfigurationen. In den oberen beiden Spektren sind Polarisator und Analysator parallel (s. Bezeichnungen: Richtungen in den Klammern); jedoch stehen sie senkrecht zur Oberflächennormale, entlang derer Anregung und Detektion erfolgten. Im unteren Scan sind Polarisator und Analysator senkrecht zueinander. Die Lage der c-Achse kann aus den oberen beiden Spektren abgelesen werden. Während das in

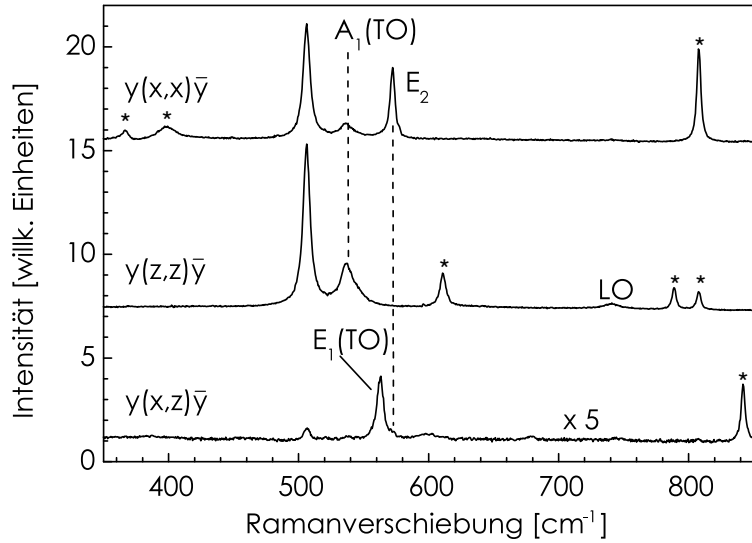


Abbildung 3.4: Ramanspektren der $[1\bar{1}00]$ -orientierten GaN/AlGaN-Quantengrabenstruktur, gewachsen auf γ -LiAlO₂(100). Die kartesischen Achsen x , y und z entsprechen den Richtungen $[1\bar{1}20]$, $[1\bar{1}00]$ und $[0001]$. Ein Sternchen markiert jeweils eine Struktur, die vom Substrat herrührt. Das Fehlen der E_2 -Phononlinie in der $y(z,z)\bar{y}$ Geometrie zeigt, dass die c -Achse tatsächlich in der Wachstumsebene liegt.

allen Orientierungen in der Ebene charakteristische Signal für GaN(0001), die E_2 -Mode, im oberen Spektrum vorhanden ist, fehlt sie im zweiten. Daraus folgt, dass die c -Achse im oberen Scan, also in der $y(x,x)\bar{y}$ Geometrie, senkrecht zur Richtung von Polarisator und Analysator orientiert ist und somit die z -Achse, welche in der Wachstumsebene liegt, der $[0001]$ -Richtung entspricht. Die weitere Zuordnung für x und y lautet demnach $[1\bar{1}20]$ und $[1\bar{1}00]$.

Das vollständige Fehlen der E_2 -Signales im mittleren Spektrum zeigt darüber hinaus, dass die M-Probe phasenrein gewachsen ist. Jeder Anteil von $[0001]$ -orientiertem GaN würde zu einem E_2 -Signal auch in dieser Geometrie führen. Weitere Untersuchungen zu den auf γ -LiAlO₂(100) gewachsenen GaN-Strukturen sind in den Referenzen [65, 88] zu finden.

3.2 Die verwendeten Messmethoden

Im Folgenden soll ein kurzer Überblick über die wichtigsten, in dieser Dissertation verwendeten Messmethoden gegeben werden. Zur allgemeinen Charakterisierung und zur Untersuchung der Polarisationsabhängigkeit der PL sind Lumineszenzmessungen bei niedrigen Anregungsdichten unter stationärer Anregung durchgeführt worden. Zeitaufgelöste PL-Messungen mit ps-Anregung dienen der Untersuchung des Einflusses elektrostatischer Felder auf die exzitonischen Lebensdauern und das zeitabhängige spektrale Verhalten der PL. Anregungen mit unterschiedlichen Ladungsträgerdichten bis über 10^{13} cm^{-2} geben Aufschluss über die Rekombinationsmechanismen in den Proben und die Beeinflussung

dieser durch die Felder. Die Untersuchung der PL von der Probenkante, unter Verwendung der Methode der variablen Strichlänge, erlaubt Einblicke in die Verstärkungsmechanismen in den Quantengrabenstrukturen. Alle in der Arbeit beschriebenen PL-Untersuchungen wurden bei einer Probentemperatur von 5 K durchgeführt.

3.2.1 Optische Untersuchungen unter Niederdichteanregung

PL-Untersuchungen mit stationärer Anregung

Die PL-Messungen unter stationärer Anregung wurden mit einem Argonionenlaser (*Spectra-Physics*) durchgeführt, der im ultravioletten Spektralbereich nur im Multiline-Modus betrieben werden kann. Aus dem Linienpaket (334 - 351 - 364)nm wurde deshalb die 334 nm-Linie (3.71 eV) mittels einer Kombination von Prisma und Lochblende ausgekoppelt. Die Anregungsdichte betrug ca. 10 W/cm². Die Detektion des Lumineszenzsignales von den Proben erfolgte senkrecht zur Oberfläche bei quasisenkrechtem Einfall des Anregungsstrahles. Dabei wurde sorgfältig darauf geachtet, dass die Detektionslinse vor dem Monochromatoreingang nicht den Reflex des Laserlichtes miterfasste. Die spektrale Zerlegung des Probensignals erfolgte in einem hochauflösenden PGS-Monochromator mit einer Fokallänge von 2 m (lineare Dispersion: 0.24 nm/mm), an dessen Ausgang sich ein blauempfindlicher Photomultiplier der Firma *Hamamatsu* in Verbindung mit einer Einzelphotonenzählung befand.

Bei den Untersuchungen der Polarisationsabhängigkeit der PL diene eine UV-Polarisationsfolie direkt vor dem Eingang des Monochromators als Analysator. Im Zusammenhang mit diesen Messungen musste neben der spektralen auch die polarsationsabhängige Empfindlichkeit des Messsystems berücksichtigt werden. Dabei wurde das Spektrum einer Bandlampe als das eines schwarzen Strahlers angenommen und zur Eichung verwendet. Bei den Reflexionsmessungen wurde detektionsseitig ebenfalls der genannte Aufbau genutzt. Eine 100 W Halogenlampe diene hier als Weisslichtquelle und ein Aluminiumspiegel als Referenz (Annahme $R = 1$).

Zeitaufgelöste PL-Messungen

Die Messungen des entsprechenden Abklingverhaltens, sowohl der InGa_N/Ga_N- als auch der Ga_N/AlGa_N-Heterostrukturen, erfolgten unter Anregung mit ps-Impulsen, jeweils, energetisch gesehen, in den Barrieren. Abbildung 3.5 zeigt schematisch den verwendeten Messaufbau. Als Anregungsquelle diene ein Nd:YLF-Laser (*Antares* der Firma *Coherent*) mit einer Basiswellenlänge von 1054 nm und einer Wiederholrate von 76 MHz. Die InGa_N-Proben (a) wurden mit der Dritten Harmonischen (Frequenzverdreifung), also 351 nm Wellenlänge, angeregt. Die Impulsbreite betrug 35 ps. Um auch die AlGa_N-Proben (b) energetisch in den Barrieren anzuregen, musste im Experiment eine kürzere Wellenlänge genutzt werden. Deshalb wurde hier ein mit der Zweiten Harmonischen des Antares gepumpter Farbstofflaser (Farbstoff DCM) frequenzverdoppelt und die Proben mit 325 nm Wellenlänge angeregt. Die Breite der Impulse betrug 3.5 ps.

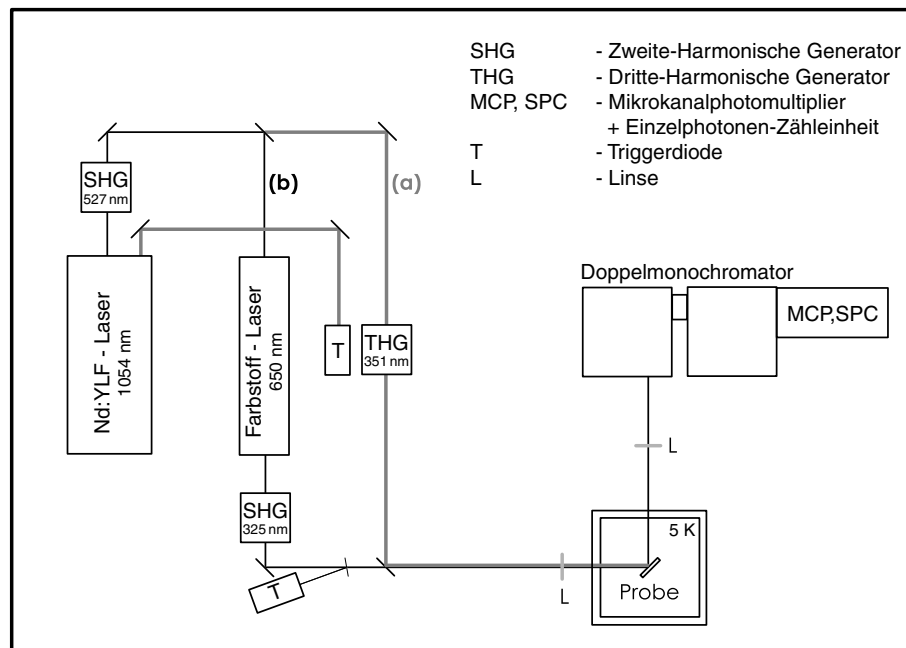


Abbildung 3.5: Messaufbau zur Untersuchung des Abklingverhaltens (Erläuterungen im Text).

In beiden Messaufbauten wurde die Lumineszenz durch einen subtraktiv geschalteten Doppelmonochromator zerlegt. Die spektrale Auflösung der Messapparatur betrug 9 meV. Ein peltiergeköhlter Mikrokanalphotomultiplier diente als Detektor einer zeitkorrelierten Einzelphotonenzähleinheit, deren zeitliche Auflösung 35 ps betrug. Entsprechend der Wiederholrate des Anregungslaser ergab sich für die Detektion ein Zeitfenster von rund 13 ns.

3.2.2 Untersuchungen der Oberflächen-PL bei höheren Ladungsträgerdichten

Um den Einfluss der elektrostatischen Felder in den Heterostrukturen detaillierter zu untersuchen und Erkenntnisse über die Gewinnmechanismen in den InGa_N/Ga_N- und den Ga_N/AlGa_N-Quantengrabenstrukturen zu erlangen, wurden Experimente bei Anregungen mit hohen Ladungsträgerdichten bis in den Bereich von $> 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ durchgeführt. Dabei wurden sowohl zeitaufgelöste als auch zeitintegrierte PL-Spektren untersucht. Die Proben wurden mit der 337 nm-Linie eines Stickstofflasers (*MSG 400*, der Firma *LTB*) mit einer Impulsbreite von 500 ps angeregt. Die Wiederholrate betrug 10 bzw. 12 Hz.

Zeitabhängige PL-Spektren der InGa_N/Ga_N-Quantengraben Um das spektrale Emissionsverhalten der InGa_N-Proben nach einem Anregungsimpuls zeitlich näher zu betrachten, wurden unter der gepulsten Anregung jeweils zu einem bestimmten Zeitpunkt die PL-Spektren erfasst. Dazu diente ein digitales Speicheroszilloskop HP 54522A (*Hew-*

lett Packard), das, getriggert durch den Anregungsimpuls, zu einem definierten Moment nach der Anregung einen Detektor (Mikrokanalphotomultiplier) auslas. Die spektrale Zerlegung des Lumineszenzlichtes erfolgte zuvor in einem Gittermonochromator (*SPM2*).

Durch eine Lochblende im Anregungsstrahl wurde ein homogener Intensitätsbereich aus dem speziell im Randbereich inhomogenen Laserprofil herausgeschnitten. Eine Zylinderlinse fokussierte das Laserlicht unter einem Winkel von 45° als vertikalen Strich (ca. $3 \text{ mm} \times 0.1 \text{ mm}$) auf die Probenoberfläche, um eine optimale Lichtausbeute bei senkrechtem Eintrittsspalt des Monochromators zu gewährleisten. Die Ladungsträgerdichte lag in diesem Experiment bei etwa 10^{13} cm^{-2} pro Quantengraben.

Intensitätsabhängige Messungen der Oberflächenemission Die Ladungsträgerdichte ist bei allen bereits beschriebenen Experimenten im Rahmen des jeweiligen Messaufbaus variiert worden. Um mit dem Parameter einen größeren Dynamikbereich zu erschließen, wurden noch einmal speziell dichteabhängige PL-Messungen unter Anregung mit dem Stickstofflaser durchgeführt. Die Variation der Ladungsträgerdichten erfolgte mit zuvor exakt für die Laserenergie vermessenden Graufiltern, in einem Dichtebereich von 10^{12} bis über 10^{13} Ladungsträgern pro cm^2 und Quantengraben. Als Detektoreinheit diente eine In_2 -gekühlte CCD-Matrix zusammen mit einem Gitterspektrometer (*HR320*)¹. Die spektrale Auflösung der Messapparatur betrug 2 meV .

3.2.3 Messungen des optischen Gewinns an (Al,In,Ga)N-Heterostrukturen

Um Aussagen über den optischen Gewinn und die ihm zugrundeliegenden Mechanismen in den (Al,In,Ga)N-Heterostrukturen treffen zu können, ist die Methode der variablen Strichlänge angewendet worden, welche 1971 von Shaklee und Leheny [89] eingeführt wurde. Hierbei wird die Probe mit einem in seiner Länge veränderlichen Fokuss in Form eines horizontalen Streifens und bei senkrechtem Einfall auf die Oberfläche angeregt. Untersucht wird das Licht, welches, auf seinem einfachen Weg im Quantengraben entlang des Anregungsstriches verstärkt, von der Probenkante emittiert wird (ASE - *engl. Amplified Spontaneous Emission*). Dabei ist sorgfältig darauf zu achten, dass kein Licht erfasst wird, dass das angeregte Volumen bereits verlassen hat, bevor es die Probenkante erreicht.

Abbildung 3.6 zeigt den verwendeten Messaufbau. Als Anregungsquelle diente ein mit einem Excimerlaser (308 nm) gepumpter Farbstofflaser (Farbstoff p-Terphenyl) mit 343 nm und einer Impulsdauer von 15 ns (Wiederholrate 9 Hz) für die InGaN/GaN-Proben (a) bzw. der erwähnte Stickstofflaser (337 nm) mit einer Impulsbreite von 500 ps und einer Wiederholrate von 20 Hz für die Untersuchung der GaN/AlGaIn-Proben (b). Die Anregungsdichten betrugen ca. 2 MW/cm^2 für die InGaIn-Proben und ca. 100 MW/cm^2 bzw. 1.3 MW/cm^2 für die c-orientierte und die m-orientierte GaN/AlGaIn-Heterostruktur. Dies entspricht in allen Fällen Ladungsträgerdichten von über 10^{13} cm^{-2} pro Quantengraben. Eine Zylinderlinse (ZL) fokussierte das Laserlicht auf einen Spalt, der in Höhe und Breite

¹Matrix: EG&G, 256×1024 Pixel / HR320: lineare Dispersion 2.08 nm/mm

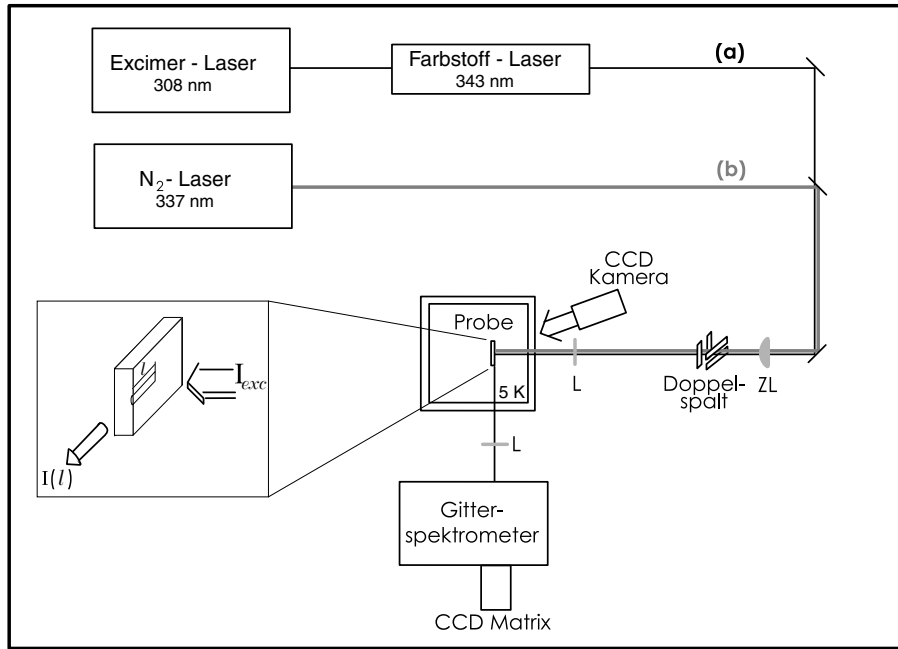


Abbildung 3.6: Messaufbau nach der Methode der variablen Strichlänge zur Messung von Gewinnspektren (Erläuterungen im Text).

justierbar war. Dieser wurde dann mit einem Verhältnis von 2:1 auf die Probenoberfläche abgebildet. Eine CCD-Kamera ermöglichte die Kontrolle, dass der Anregungsstrich auf der Probe exakt an der Probenkante begann. Seine Länge konnte durch Wahl der Spaltbreite eingestellt werden. Um dies zu erreichen, wurde der Spalt so konstruiert, dass er in der Horizontalen nur eine bewegliche Backe besaß.

Die Kamera diente gleichzeitig der Überwachung der Qualität des auf die Probe abgebildeten Laserprofils. Durch softwareseitige Vermessung des Striches war es möglich, eine über den gesamten Längenbereich konstante Anregungsintensität zu gewährleisten. Die in den Experimenten verwendete Strichlänge l variierte zwischen $100 \mu\text{m}$ und $750 \mu\text{m}$, die Strichhöhe betrug $30 \mu\text{m}$ (InGaN) bzw. $50 \mu\text{m}$ (AlGaIn). Die Emission von der Probenkante wurde mit einem Gitterspektrometer (*HR320*) in Verbindung mit der im vorigen Abschnitt genannten InN_2 -gekühlten CCD-Matrix und einer spektralen Auflösung von 2 meV analysiert.

Die Ableitung der Gewinnspektren erfolgte nach Formel 3.1 aus der Längenabhängigkeit der ASE, $I(l)$, die der Intensität der Kantenphotolumineszenz entspricht, wobei I_{SP} die spontane Emissionsrate pro Längeneinheit, $g = g' - \alpha$ die Kleinsignalverstärkung, g' der Gewinn durch stimulierte Emission und α der optische Verlust (Absorption) sind.

$$I(l) = \frac{I_{sp}}{g} (e^{gl} - 1) \quad (3.1)$$

Aufgrund der speziellen Situation in Heterostrukturen mit Quantenkonfinement und Wellenleitungseigenschaften ist der experimentell ermittelte optische Gewinn g (die Klein-

signalverstärkung) stark von den strukturellen Probenparametern und der stimulierenden Mode abhängig. Er wird als der *modale* Gewinn bezeichnet und bestimmt maßgeblich die Lasingeigenschaften einer Heterostruktur. Aus ihm kann entsprechend der Probengeometrien der materielle Gewinn als Kenngröße des Materialsystems ermittelt werden (s. Abschnitt 4.4). Aus Gleichung 3.1 folgt, dass eine mit zunehmender Strichlänge superlinear ansteigende PL-Intensität ein positives g bedeutet.

Neben der gesuchten Kleinsignalverstärkung enthält Gleichung 3.1 noch eine weitere Unbekannte, die spontane Emissionsrate. Für zwei Kantenlumineszenzspektren bei unterschiedlicher Strichlänge ergibt sich ein Gleichungssystem mit zwei Unbekannten aus dem sich in der Folge g numerisch ermitteln lässt.

Wenn die Länge des Anregungsfokuss einen bestimmten Wert, die sogenannte Sättigungslänge, erreicht, wird der Bereich der Kleinsignalverstärkung verlassen. $I(l)$ folgt nicht länger dem exponentiellen Zusammenhang aus Gleichung 3.1. Die Menge der Photonen des entlang des Anregungsstriches verstärkten Lichtes ist dann so groß, dass ein wesentlicher Teil der angeregten Zustände entleert wird. Mit zunehmender Strichlänge und dadurch auch zunehmender Photonenzahl sind demnach nicht mehr genügend angeregte Zustände vorhanden, um jedes weitere Photon zu verstärken. Bei der Bestimmung des optischen Gewinns der untersuchten Proben wurden die Längen des Anregungsstriches so gewählt, dass keine Sättigungseffekte auftraten.

Kapitel 4

Messergebnisse und Diskussion

Die Vielzahl der offenen Fragen zum GaN-Materialsystem bietet eine ganze Reihe von experimentellen Ansätzen, wobei in dieser Arbeit vor allem die Möglichkeit bestand, erstmals $[1\bar{1}00]$ -orientierte GaN-Heterostrukturen untersuchen zu können. Eine in der Literatur weit verbreitete Methode, die Effekte der piezoelektrischen Felder näher zu studieren, ist dabei die Untersuchung der PL-Eigenschaften von Quantengrabenstrukturen in Abhängigkeit von der Quantengrabenbreite. In welchem Maße sich die internen Felder durch optisch induzierte Ladungsträger beeinflussen lassen, ist dagegen vergleichsweise wenig diskutiert (s. Abschnitt 1).

Auf der Grundlage der für diese Arbeit zu Verfügung stehenden Proben, bot sich die Möglichkeit, die elektrostatischen Felder in GaN-Heterostrukturen umfassend zu studieren. Dabei ergaben sich verschiedene Herangehensweisen, den Einfluss der Felder auf die Rekombinationsmechanismen in solchen Strukturen zu untersuchen; (1) der Vergleich zweier identisch strukturierter GaN/AlGaIn-Heterostrukturen mit unterschiedlicher kristallografischer Orientierung und damit unterschiedlicher Feldsituation, einer konventionell $[0001]$ -orientierten Probe und einer „feldfreien“ $(1\bar{1}00)$ -gewachsenen Struktur, (2) die Untersuchung der PL in Abhängigkeit von der optisch induzierten Ladungsträgerdichte bei zwei InGaIn/GaN-Quantengrabenstrukturen mit ansonsten gleichem Probenaufbau unter (3) der Variation der Quantengrabenbreite.

Die Untersuchungen der stimulierten Emission und des optischen Gewinns sollen Aufschluss über die Lasingeigenschaften und das Verhalten der Proben bei extrem hohen Ladungsträgerdichten geben.

Bevor auf diese Studien weiter eingegangen wird, werden zu Beginn die in dieser Arbeit untersuchten Proben mit ihren charakteristischen PL-Eigenschaften vorgestellt.

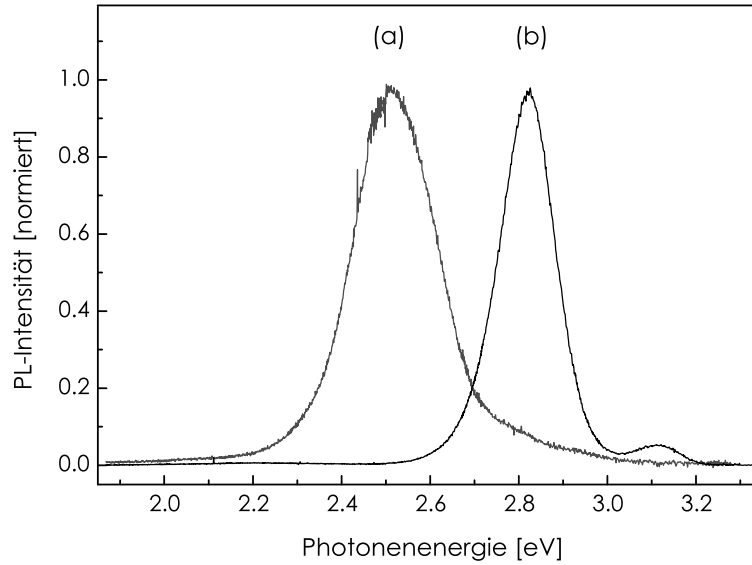


Abbildung 4.1: Charakteristische Photolumineszenzspektren der InGaN/GaN-Quantengrabenstrukturen mit (a) 5.9 nm und (b) 3.1 nm Grabenbreite bei $T = 5$ K ($I_0 = 10$ mW/cm²). Der Stark-Effekt führt zu einer deutlichen Rotverschiebung bei breiteren Quantengraben.

4.1 Charakteristische PL-Eigenschaften der verwendeten Quantengrabenstrukturen im Niederdichtebereich

4.1.1 Die PL-Spektren der InGaN/GaN-Quantengrabenstrukturen

Als erste optische Charakterisierung von Halbleitermaterialien wird im Allgemeinen die PL bei stationärer Anregung und geringen Anregungsdichten untersucht. Abbildung 4.1 zeigt die normierten PL-Spektren beider InGaN/GaN-Proben bei einer Temperatur von 5 K, die mit einer Anregungsdichte von ca. 10 mW/cm² gemessen wurden (HeCd-Laser, $\lambda = 325$ nm) [55]. Das Lumineszenzspektrum der Probe mit den 5.9 nm breiten Gräben (a) hat sein Maximum bei rund 2.51 eV während die Probe mit 3.1 nm Grabenbreite (b) bei rund 2.83 eV emittiert. Die Emission beider Quantengrabenpakete erfolgt im Prinzip einbandig. Auf die kleine hochenergetische Schulter im Spektrum (b) wird später eingegangen. Die spektralen Breiten der Proben liegen zwischen 140 und 200 meV. Dies ist möglicherweise auf, wachstumsbedingt, geringfügig unterschiedliche Schichtdicken zurückzuführen¹. Außerdem existiert bei der endlichen Zahl von Quantengraben aufgrund der Randbedingungen an den Grenzen Pufferschicht–Quantengraben und Quantengraben–Vakuum/Luft (beispielsweise Existenz von Oberflächenladungen) für jeden Graben ein etwas anderes piezoelektrisches Feld. Daraus resultieren leicht unterschiedliche Übergangsenergien für jeden Quantengraben. Je nach Untergrunddotierung und In-Gehalt kann das

¹Bei der Deposition wurde speziell darauf geachtet, möglichst glatte Grenzflächen zu erzielen, um Lokalisation an Grenzflächenrauhigkeiten zu vermeiden [65].

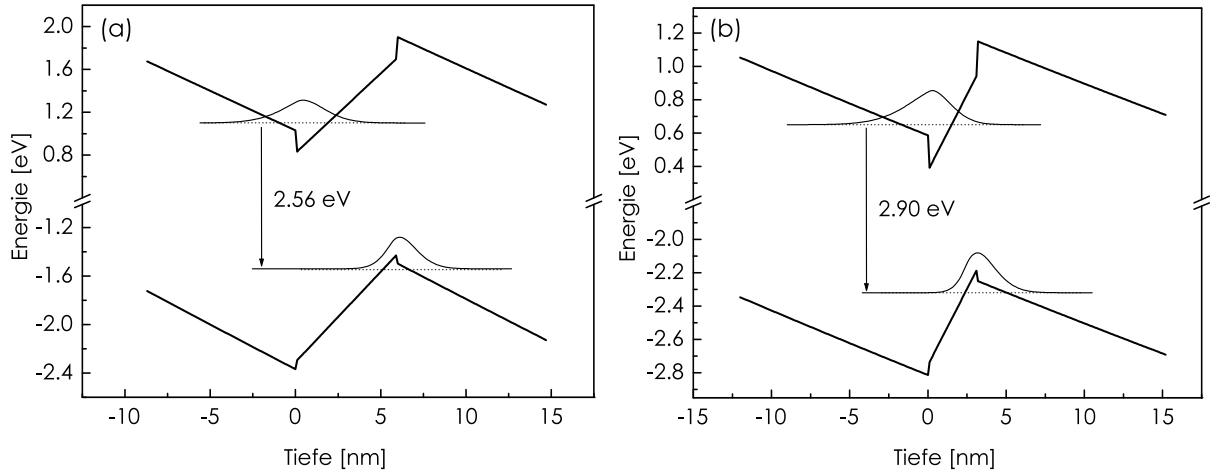


Abbildung 4.2: Bandkantenverlauf und Wellenfunktionen für die Grundzustände von Elektron und Loch für (a) einen 5.9 nm und (b) einen 3.1 nm breiten Quantengraben der $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{N}/\text{GaN}$ -Mehrfachquantengrabenstrukturen mit $x = 0.17$ bzw. 0.16 bei $T = 5$ K, bestimmt durch die selbstkonsistente Lösung der Schrödinger-Poisson-Gleichungen.

zu Halbwertsbreiten des PL-Spektrums von 100 meV und größer führen [90].

Deutlich zu erkennen, liegt die Emission der Probe mit den breiteren Quantengräben ca. 320 meV niederenergetischer der Lumineszenz der Struktur mit den 3.1 nm breiten Gräben. Berechnungen der Übergangsenergien für die beiden Proben, ohne interne elektrostatische Felder (s. unten), ergeben Übergangsenergien von 3.10 eV und 3.16 eV für Gräben von 5.9 nm bzw. 3.1 nm Breite. Es ergibt sich also eine Energiedifferenz von nur 60 meV, die auf dem unterschiedlich starken Konfinement in den Gräben beruht. Die durch den QCSE hervorgerufene totale Verschiebung ΔE beider Proben beträgt experimentell 590 meV bzw. 330 meV. Dies demonstriert bereits sehr deutlich, wie groß der Einfluss der internen Felder auf die Bänder ist.

Abbildung 4.2 zeigt die Bandkantenverläufe, Grundzustandsenergien und Wellenfunktionen für Elektronen und Löcher beider Proben bei $T = 5$ K für jeweils einen einzelnen Quantengraben. Die Berechnung der Bandprofile, der Wellenfunktionen und der Übergangsenergien erfolgte durch die selbstkonsistente Lösung der Schrödinger-Poisson-Gleichungen in Effektivmassennäherung mit einem Freeware-Programm von G. Snider [91]. Die erhaltenen Wellenfunktionen wurden durch eine unabhängige numerische Lösung der Schrödinger-Gleichungen für jedes Bandkantenprofil überprüft.

Für die Berechnungen wurden die in den Tabellen 2.1 und 4.1 aufgeführten Parameter verwendet. Dabei sind die Werte für die ternären $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{N}$ -Gräben durch lineare Interpolation aus den Werten für GaN und InN ermittelt worden.

Die Polarisationsladungen an den Grenzflächen zwischen den einzelnen Schichten (Abschnitt 2.1.3) wurden durch 1 \AA dicke, hochdotierte Schichten mit einer Volumenladungsträgerdichte $n_{3D} = \Delta \mathbf{P} / (e \text{ \AA})$, mit e der Elementarladung, beschrieben. Dabei ist $\Delta \mathbf{P}$ gleich der Differenz der Gesamtpolarisationen zweier Schichten an der jeweiligen Grenz-

Tabelle 4.1: Verwendete Materialparameter von GaN, AlN und InN für die selbstkonsistente Lösung der Schrödinger-Poisson-Gleichungen. ϵ_r ist die relative Dielektrizitätskonstante. Die Angaben sind typische Werte innerhalb des Wertespektrums in der Literatur.

	m_e/m_0	m_h/m_0	ϵ_r	E_g [eV]
GaN	0.19	1	9.77	3.49
AlN	0.20	1	8.5	6.1
InN	0.20	1	12.0	1.8

fläche [43]. Die Polarisierung der einzelnen Schichten ergibt sich aus den Gleichungen 2.14 und 2.15. Für beide Proben wurde eine Hintergrunddotierung von $n_0 = 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ angenommen². Bei der Berechnung der Bandlücken der ternären Gräben wurde die tensile Verspannung berücksichtigt und ein Bowingparameter von 1 eV verwendet [92].

Wie bereits erwähnt, variiert die Übergangsenergie in einem Mehrfachquantengraben aufgrund der jeweils vorhandenen, leicht unterschiedlichen elektrostatischen Felder geringfügig von einem Graben zum nächsten. Deshalb ist in Abb. 4.2 die mittlere Übergangsenergie aller zehn Quantengräben angegeben. Sie beträgt 2.56 eV (5.9 nm Grabenbreite) bzw. 2.90 eV (3.1 nm Grabenbreite). Diese Angaben sind nur als Richtwerte zu sehen, da bei der Mittlung die unterschiedlichen Anteile der einzelnen Quantengräben am Gesamtsignal der PL, beispielsweise hervorgerufen durch die unterschiedlichen Besetzungen der einzelnen Gräben aufgrund des Absorptionsprofils, nicht berücksichtigt wurden³. Auch hat sich bei der Berechnung der Bandstrukturen gezeigt, dass die Hintergrunddichte einen deutlichen Einfluss auf die Übergangsenergie im Quantengraben hat. Mayrock *et al.* [90] hat beispielsweise für einen $\text{In}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{N}/\text{GaN}$ -Einfachquantengraben mit 3 nm Graben- und 8 nm Barrierenbreite eine Blauverschiebung von rund 40 meV für eine Veränderung der Hintergrunddichte um eine Größenordnung (von 5×10^{17} auf $5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$) berechnet. Unter Berücksichtigung dieser Situation zeigen die berechneten Übergangsenergien eine gute Übereinstimmung mit den experimentell ermittelten Werten. Vor allem betonen sie noch einmal qualitativ den Einfluss der Breite des durch das interne Feld beeinflussten Grabens auf die Übergangsenergien.

Sehr deutlich wird in Abb. 4.2 auch die räumliche Lage der Wellenfunktionen und ihre unterschiedlich starke Überlappung. Neben dem größeren Stark-Effekt für die Probe mit den breiteren Quantengräben ist auch eine wesentlich stärkere räumliche Trennung der Elektron- und Lochwellenfunktionen für diese Probe zu sehen. Letzteres bewirkt eine unterschiedliche Lebensdauer der Ladungsträger in beiden Proben. Wie in Abschnitt 4.1.4 ausführlich diskutiert und auch experimentell gezeigt wird, folgt aus der größeren Trennung der Ladungsträger im breiteren Quantengraben eine längere Lebensdauer.

²Dies entspricht etwa 1% der Polarisationsladungsdichte, sodass der Beitrag der Hintergrunddotierung zur Abschirmung interner elektrostatischer Felder vernachlässigt werden soll.

³Eine genauere Analyse der Beiträge der einzelnen Quantengräben zur Lumineszenz einer InGaN-Mehrfachquantengrabenstruktur ist in [90] zu finden.

Die hochenergetische Schulter im PL-Spektrum der 3.1 nm breiten Quantengrabenstruktur In Abbildung 4.1 ist bei Probe (b) ein geringer hochenergetischer Peak bei etwa 3.1 eV zu erkennen. Durch Kathodolumineszenzmessungen ermittelte [65] als räumliche Herkunft dieser Erscheinung den unmittelbaren Bereich der ersten Monolagen nach der Pufferschicht. Diese Region des ersten Quantengrabens weist herstellungsbedingt, aufgrund einer kurzen Wachstumsunterbrechung nach der Pufferschicht, eine wesentlich höhere Dotierung ($\approx 2.5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$) auf, als wie sie in den anschließend gewachsenen Gräben vorliegt. Die durch die Dotierung erzeugten zusätzlichen Ladungsträger tragen, wie die optisch angeregten, zur Abschirmung der internen Felder bei. Da die Abschirmung in diesem Graben daher größer ist als in den anderen Quantengräben, führt sie hier zu einer stärkeren Verringerung des elektrostatischen Feldes, im Vergleich mit den weiteren Gräben. Es folgt eine höhere Übergangsenergie für den zuerst gewachsenen Quantengraben.

4.1.2 Die PL-Spektren der GaN/AlGaN-Quantengrabenstrukturen

In Abschnitt 3.1.2 sind die [0001]- und $[1\bar{1}00]$ -orientierten GaN/AlGaN-Strukturen bereits ausführlich vorgestellt worden. Im Folgenden werden nun ihre charakteristischen PL-Eigenschaften diskutiert. Abbildung 4.3 zeigt die Photolumineszenzspektren beider Proben unter stationärer Anregung bei geringen Anregungsdichten (10 W/cm^2). In beiden Fällen besteht das Lumineszenzsignal im untersuchten Spektralbereich jeweils aus einer einzelnen Bande. Die Übergangsenergie der C-Probe beträgt 3.40 eV, während die M-Probe bei ungefähr 3.47 eV emittiert. Beide Spektren sind durch Schichtdickeninterferenzen beeinflusst, welche deutlich stärker bei der M-Probe auftreten. Dies ist auf den

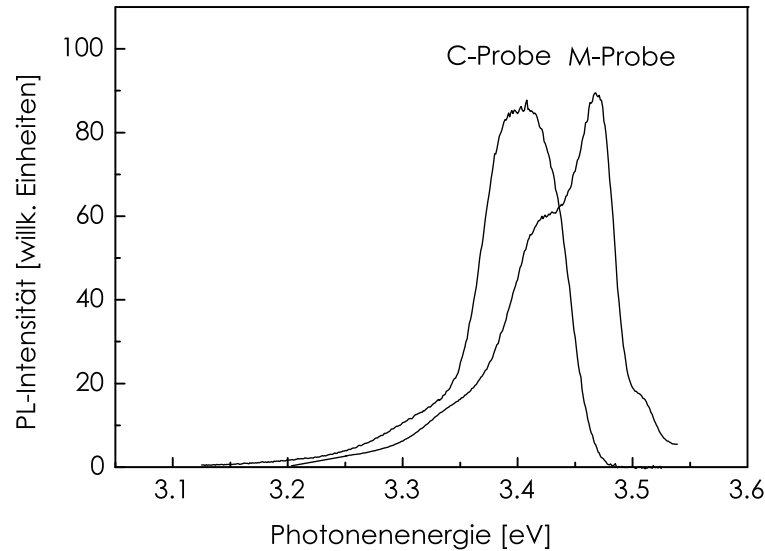


Abbildung 4.3: Charakteristische PL-Spektren der C- und der M-Probe bei $T = 5 \text{ K}$ ($I_0 = 10 \text{ W/cm}^2$). Deutlich ist bei der C-Probe, gegenüber der „feldfreien“ M-Probe, der Einfluss der elektrischen Polarisation auf die Emissionsenergie zu erkennen.

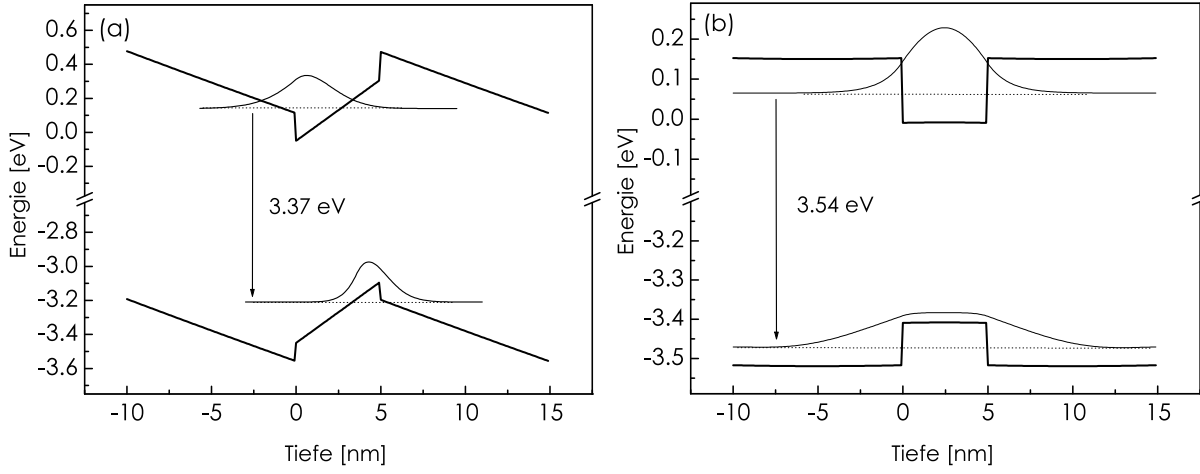


Abbildung 4.4: Bandkantenverlauf und Wellenfunktionen für die Grundzustände von Elektron und Loch für (a) die (0001)- und (b) die (1100)-gewachsene Mehrfachquantengrabenstrukturen bei $T = 5$ K, bestimmt durch die selbstkonsistente Lösung der Schrödinger-Poisson-Gleichungen.

hier größeren Brechungsindexunterschied zwischen dem Substrat ($n_{\text{LiAlO}_2} = 1.60$ [93], $n_{\text{SiC}} = 2.817$ [94]) und der Pufferschicht ($n_{\text{GaN}} = 2.65$ [92]) zurückzuführen⁴. Die spektrale Breite der PL-Banden beträgt rund 80 meV und resultiert vermutlich aus geringfügigen Schwankungen zwischen den Dicken der einzelnen Quantengraben und von der Lokalisation von Ladungsträgern, hervorgerufen durch Grenzflächenrauhigkeiten zwischen den einzelnen Schichten. Außerdem können bei der C-Probe auch die bereits erwähnten leicht unterschiedlichen elektrostatischen Felder in den einzelnen Gräben zu einer Verbreiterung der Emission geführt haben.

Deutlich ist zu sehen, wie die spektrale Lage der Lumineszenzen beider Proben durch die jeweilige Feldsituation beeinflusst ist. Während die Emissionsenergie der C-Probe als Konsequenz der starken elektrostatischen Felder rotverschoben gegenüber der GaN-Bandkante ist (Stark-Effekt), stimmt die spektrale Lage der Lumineszenz der M-Probe mit den für lokalisierte Exzitonen in breiten Quantengraben zu erwartenden Energien überein und ist somit ein klares Zeichen für das Fehlen der Felder in dieser Probe⁵.

Analog zu den InGaN/GaN-Strukturen wurden auch für diese Proben die entsprechenden Bandprofile, Grundzustandsenergien und Elektron- und Lochwellenfunktionen durch die selbstkonsistente Lösung der Schrödinger-Poisson-Gleichungen berechnet. Abbildung 4.4 zeigt die Situation für jeweils einen Quantengraben für beide Proben. Die verwendeten Parameter sind wieder den Tabellen 2.1 und 4.1 zu entnehmen, und die Werte für die

⁴Angaben für $\lambda = 365$ nm, $T = 20$ °C

⁵Volumen-GaN: L1-Linie = 3.469 eV ((D^0, X) mit $D^0 = V_N$), L2-Linie = 3.463 eV (Al ist isoelektrisches Zentrum), L3-Linie = 3.455 eV ((A^0, X) mit $A^0 = Cd, Mg, Be, V_{Ga}$), L4-Linie = 3.474 eV und L5-Linie = 3.438 eV (beide unbekannte (A^0, X)). D^0 und A^0 entsprechen Donator und Akzeptor, V bedeutet *vacancy*, Fehlstelle. [36]

ternären Barrieren wurden ebenfalls durch lineare Interpolation ermittelt. Für die Berechnung der Bandlücke ist hier ein Bowing von $b = 0$ angenommen worden, da die Quantengrabenübergangsenergie nur äußerst geringfügig von der Größe des Bowingparameters b im Bereich von $(-2 \leq b \leq 1)$ eV abhängt, dem Bereich, in dem sich die Werte in der Literatur im Allgemeinen befinden. Es ist bekannt, dass der Leitungsbandoffset des GaN–AlN vom jeweiligen Spannungszustand des GaN bzw. AlN abhängt [43]. Hier wurde ein Leitungsbandoffset von 70% der totalen Bandlückendifferenz zwischen GaN und AlN angenommen, wie für auf relaxiertem GaN kohärent gewachsenem AlN in der Literatur berichtet wird [43, 95, 96].

Deutlich ist in Abb. 4.4(a) für die konventionelle C-Probe die durch den Stark-Effekt hervorgerufene Bandverbiegung analog zu den InGaN-Strukturen zu sehen, verbunden mit der Reduzierung der Übergangsenergie (Rotverschiebung) und der Separation von Elektronen und Löchern. Im Gegensatz dazu herrschen im Falle der M-Probe Flachbandbedingungen, die Überlappung der Wellenfunktionen von Elektron und Loch ist nahezu Eins und die Übergangsenergie des einzelnen Quantengrabens sollte nur durch das Quantenkonfinement beeinflusst sein.

Auch hier weichen die rechnerisch ermittelten Übergangsenergien etwas von den experimentellen Ergebnissen ab, wobei die in Abschnitt 4.1.1 genannten Ursachen im Falle der C-Probe ebenfalls in Frage kommen. Bei der M-Probe kann allerdings nicht mit einer unterschiedlichen Feldsituation argumentiert werden, da in der Struktur keine internen Felder auftreten. Es ist hier jedoch von der Rekombination von lokalisierten Exzitonen auszugehen (s. oben), was die Differenz zwischen Experiment und Rechnung erklärbar macht. Bei den Berechnungen konnte eine Lokalisation nicht berücksichtigt werden.

4.1.3 Optische Polarisation der PL der $[1\bar{1}00]$ -orientierten GaN/AlGaN-Heterostruktur

Optische Polarisation in hexagonalem Volumen-GaN

Im Gegensatz zur bisher besprochenen elektrischen Polarisation, die die Dipoldichte eines Körpers beschreibt, bezeichnet die optische Polarisation die Schwingungsebene des Vektors der elektrischen (bzw. magnetischen) Feldstärke einer elektromagnetischen Welle⁶. Bevor wir die Polarisationsabhängigkeit der PL beider GaN/AlGaN-Heterostrukturen diskutieren, soll zu Beginn die Situation für Volumen-GaN betrachtet werden.

Die Polarisation der spontanen PL wird durch die Interband-Dipol-Matrix-Elemente bestimmt, welche sich wiederum aus den durch die Valenzbandstruktur bestimmten Auswahlregeln für hexagonales GaN ergeben. Durch die Wurzitstruktur des Materials mit seiner C_{6v} Symmetrie (sp^3 -Hybridisierung) bewirken das Kristallfeld und Spin-Bahn-Wechselwirkungen eine Aufspaltung des Valenzbandes in die drei Subbänder Γ_9 , Γ_7 und Γ_7 , wie in Abb. 4.5 dargestellt. Das entspricht, bei Beachtung des Spins, einem sechsfach

⁶Eine ausführliche Diskussion der Polarisation des Lichtes kann der Grundlagenliteratur entnommen werden.

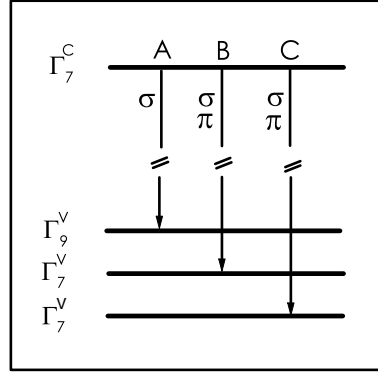


Abbildung 4.5: Oberste Valenzbänder und tiefstes Leitungsband am Γ -Punkt in hexagonalem GaN sowie die möglichen Polarisierungen σ und π der entsprechenden optischen Übergänge für die C_{6v} -Symmetrie.

entarteten Valenzband, beschrieben durch $(p_x, p_y, p_z) \times (\alpha, \beta)$, wo α und β die Spinwellenfunktionen für Spin parallel und antiparallel zu z sind⁷. Es entsteht eine große Anisotropie zwischen den Richtungen parallel und senkrecht zur c -Achse.

Für den Fall der optischen Rekombination von Exzitonen können wir uns auf die Umgebung unmittelbar um den Γ -Punkt ($\mathbf{k} = 0$) beschränken. Hier wird das energetisch höchste Band, das A-Band, ausschließlich durch die p_x - und p_y -Orbitale gebildet. p_z -Orbitale sind nur bei den tieferen Subvalenzbändern B und C vorhanden.⁸ Die A-Exzitonen-Zustände (schweres Loch) mit ihrer Projektion $j_z = \pm 3/2$ des Gesamtdrehimpulses auf die c -Achse sind demzufolge vollständig σ -polarisiert mit $\mathbf{E} \perp \mathbf{c}, \mathbf{k} \perp \mathbf{c}$. Für B- und C-Exzitonen sind σ -polarisierte Übergänge annähernd gleich wahrscheinlich wie Übergänge mit π -Polarisation ($\mathbf{E} \parallel \mathbf{c}, \mathbf{k} \perp \mathbf{c}$). Die hier beteiligten Zustände bestehen aus allen drei p -Orbitalen [98].

Die angenommenen Betrachtungen sollten im Allgemeinen nicht nur für Volumen-GaN, sondern auch für Quantengraben gültig sein. D. h., Licht, das unter den oben genannten Bedingungen parallel zur c -Achse einer Homo- oder Heterostruktur emittiert wird ($\mathbf{k} \parallel \mathbf{c}$), ist unpolarisiert (s. Abb. 4.6). Dies ist stets der Fall bei der Lumineszenz von der Oberfläche einer c -orientierten Probe.

Anders ist die Situation bei einer Struktur, deren Wachstumsfläche die M-Fläche ist. Hier ist die Oberfläche der Probe die $(1\bar{1}00)$ -Fläche und die Lumineszenz wird senkrecht zur c -Achse detektiert ($\mathbf{k} \perp \mathbf{c}$). Das \mathbf{E} -Feld kann sowohl parallel als auch senkrecht zur c -Achse polarisiert sein. Da bei tiefen Temperaturen, wie sie bei den Untersuchungen hier vorlagen, das PL-Signal aufgrund der schnellen Intrabandrelaxationen allein durch die Rekombination von A-Exzitonen gebildet werden sollte, ist in diesem Fall also eine vollständig σ -polarisierte Emission der Oberflächen-PL zu erwarten.

⁷Die kartesischen Achsen x , y und z entsprechen den Richtungen $[11\bar{2}0]$, $[1\bar{1}00]$ und $[0001]$.

⁸Eine detaillierte Beschreibung der Bandstruktur für das Wurzigitter bei $\mathbf{k} = 0$ gibt J. J. Hopfield mit Hilfe eines quasikubischen Modells in [97].

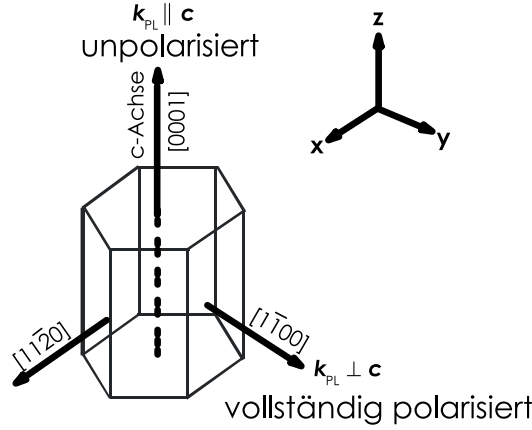


Abbildung 4.6: Schema einer hexagonalen Einheitszelle des GaN und Polarisation der Lumineszenz.

Polarisationsabhängige PL-Messungen an den GaN/AlGaIn-Quantengrabenstrukturen

Um diese Betrachtungen zu überprüfen, wurden an beiden GaN/AlGaIn-Proben polarisationsabhängige PL-Messungen durchgeführt. Der experimentelle Aufbau ist in Abschnitt 3.2.1 beschrieben. Die Skizzen in Abb. 4.7 verdeutlichen die kristallografischen Orientierungen, wie sie für das jeweilige Experiment vorherrschten. Durch Variation des Analysatorwinkels ϕ in kleinen Schritten von 0° bis 180° , wurde die Polarisationsabhängigkeit der PL vermessen. Dabei entspricht im Fall der M-Probe der Winkel $\phi = 90^\circ$ der Orientierung $\mathbf{E} \perp \mathbf{c}$.

Abbildung 4.7 zeigt die polarisationsabhängigen PL-Spektren beider Proben bei $T = 5$ K. Für die c-orientierte Heterostruktur konnte, wie erwartet, im Rahmen der Messgenauigkeit keinerlei Polarisationsabhängigkeit festgestellt werden. Deshalb sind in Abb. 4.7(a) nur die Spektren für $\phi = 0^\circ$ und $\phi = 90^\circ$ abgebildet. Deutlich anders ist das Verhalten der M-Probe (Abb. 4.7(b)), bei der eine starke Polarisation senkrecht zur c-Achse zu sehen ist. Dabei ist zu erkennen, dass die Extrema der Interferenzen leicht vom Polarisationswinkel abhängen, was auf die unterschiedlichen Brechungsindizes für parallel bzw. senkrecht zur c-Achse polarisiertes Licht zurückgeführt werden kann und durch Reflexionsmessungen bestätigt wurde.

Der sich aus den Spektren ergebende Polarisationsgrad ρ als Funktion der Photonenenergie wird definiert durch

$$\rho(\hbar\omega) = \frac{I_{\perp}(\hbar\omega) - I_{\parallel}(\hbar\omega)}{I_{\perp}(\hbar\omega) + I_{\parallel}(\hbar\omega)} \quad (4.1)$$

und ist ebenfalls in Abb. 4.7 gezeigt. I_{\perp} und I_{\parallel} sind hier die senkrecht und parallel zur c-Achse polarisierten PL-Intensitäten.

Ganz im Gegensatz zur C-Probe, bei der im Rahmen der Messgenauigkeit $\rho = 0$ ist, beträgt der Polarisationsgrad für die M-Probe ca. 90% und ist praktisch spektral unabhängig. Die geringe Modulation von ρ ist auf die bereits erwähnten Interferenzerscheinungen

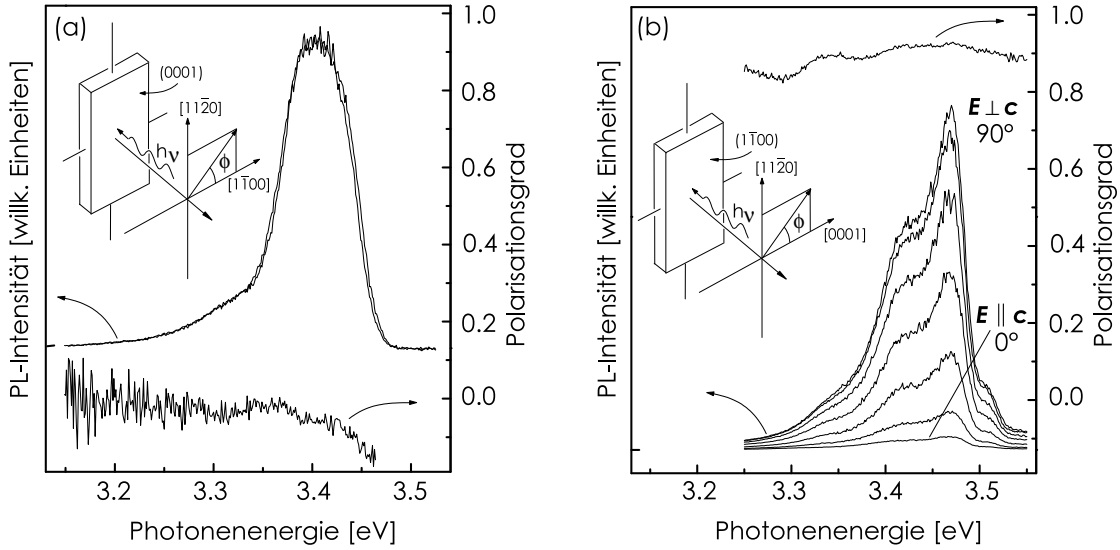


Abbildung 4.7: Polarisationsabhängige PL-Spektren und Polarisationsgrad (a) der (0001)- und (b) der (1100)-Mehrfachquantengrabenstrukturen bei $T=5\text{ K}$ ($I_0 = 10\text{ W/cm}^2$). Die C-Probe zeigt in ihrer PL keinerlei Veränderungen innerhalb der Genauigkeit unseres Messsystems. Deshalb sind hier nur die Spektren für $\phi = 0^\circ$ und $\phi = 90^\circ$ abgebildet. Die einzelnen Spektren der M-Probe entsprechen einer Winkelschrittweite von $\Delta\phi = 15^\circ$.

nungen zurückzuführen.

An dieser Stelle soll nochmal betont werden, dass die spektrale Breite der PL größer ist als die Valenzbandaufspaltung. Da keine spektrale Verschiebung der PL Spektren zwischen ($\mathbf{E} \perp \mathbf{c}$) und ($\mathbf{E} \parallel \mathbf{c}$) beobachtet werden konnte, müssen wir die Emission auf lokalisierte Zustände zurückführen, welche alle jeweils nur mit A-Exzitonen besetzt sind. (Dies lässt, verglichen mit der exzitonenischen Lebensdauer, auf eine sehr schnelle Thermalisierung schließen.) Jede Besetzung von B- und C-Zuständen würde zu zusätzlichen Komponenten in der PL mit $\mathbf{E} \parallel \mathbf{c}$ bei größeren Photonenenergien führen, wie sie bereits an Volumen-GaN bei höheren Temperaturen gesehen wurden [99]. Die spektrale Unabhängigkeit des Polarisationsgrades beweist noch einmal eindeutig, dass für unsere experimentellen Gegebenheiten tatsächlich nur A-Exzitonen an der PL beteiligt sind.

Um die Polarisationsabhängigkeit der PL noch detaillierter zu betrachten, ist in Abb. 4.8 die PL-Intensität als Funktion des Polarisationswinkels dargestellt. Durch die spektrale Integration der Lumineszenz wird über die Interferenzeffekte gemittelt. Die hervorragende Übereinstimmung zwischen dem $\sin^2(\phi)$ -Fit (durchgezogene Kurve) und den experimentellen Daten (Punkte) zeigt die genaue Bestimmung der Polarisation (des Polarisationswinkels) mit der maximalen PL-Intensität. Sie bestätigt auch noch einmal die exakte Orientierung der c-Achse in der Wachstumsebene, wie sie aus den Raman-Untersuchungen bereits abgeleitet wurde.

Die experimentellen Ergebnisse stimmen sehr gut mit den anfänglich genannten Aus-

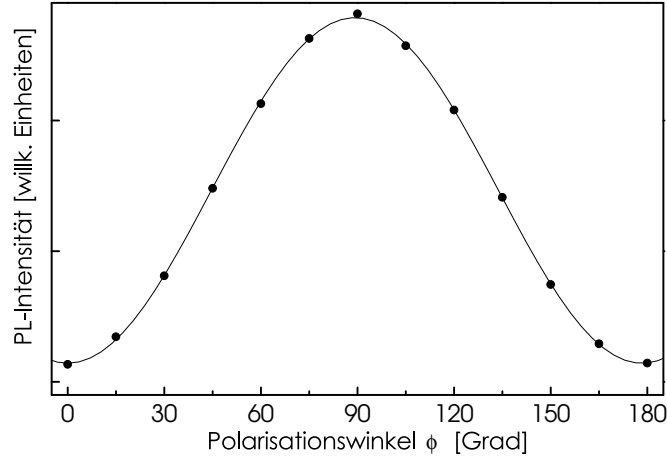


Abbildung 4.8: Spektral integrierte PL-Intensität der M-Probe als Funktion des Polarisationswinkels. Der $\sin^2(\phi)$ -Fit (durchgezogene Kurve) stimmt hervorragend mit den experimentellen Daten (Punkte) überein. Ein Winkel von 90° entspricht σ -polarisiertem Licht mit $\mathbf{E} \perp [0001]$.

wahlregeln für die Polarisation überein, allerdings mit einer Ausnahme: Der ermittelte Polarisationsgrad für die M-Probe ist mit 90% etwas kleiner als Eins. Mögliche Ursachen dafür sollen im Folgenden näher erläutert werden.

Möglichkeiten des Aufbrechens der Polarisationsauswahlregeln

Prinzipiell gibt es verschiedene mögliche Gründe für das Aufweichen der Polarisationsauswahlregeln. Dabei kann als eine Ursache die Lokalisation der Exzitonen in Frage kommen. Sie führt zu einer Unschärfe der planaren Komponenten k_x und k_z des Wellenvektors \mathbf{k} aufgrund der räumlichen Einengung des Exzitons. Da diese jedoch in der aktiven Schicht auf einer Längenskala größer des Bohrradius stattfindet, ist der 2D-Wellenvektor in der Ebene für eine Erklärung zu gering verbreitert.

Genauso kann der Einfluss der Verspannung (beispielsweise durch leicht unterschiedliche thermische Ausdehnungskoeffizienten) auf die Oszillatorstärke der einzelnen Subbänder als Ursache ausgeschlossen werden, um die vorgestellten experimentellen Ergebnisse zu beschreiben. Biaxiale Verspannungen führen entsprechend der Berechnungen von Gil *et al.* [100] auch bei A-Exzitonen zu einem π -polarisierten Anteil in der Emission. Allerdings reichen die experimentell ermittelten Werte der planaren Verspannungen ($\sigma_{[0001]} = 3$ kbar, $\sigma_{[11\bar{2}0]} = 8$ kbar) [88] nach diesen Rechnungen nicht aus, die ermittelte Abweichung des Polarisationsgrades von ca. 10% von der vollständigen Polarisation der PL der M-Probe zu erklären.

Eine dritte Möglichkeit, die zum Aufbrechen der Auswahlregeln für die Polarisation in Frage kommt, ist die Einmischung von p_z -Orbitalen durch die Quantisierung senkrecht zur c- bzw. z-Achse:

Einfluss der Konfinementeffekte auf die Polarisationsauswahlregeln Ähnlich der oben genannten Lokalisation eines Exzitons führt natürlich auch seine gesamtheitliche räumliche Einschränkung in Wachstumsrichtung zu einer Unschärfe des entsprechenden Wellenvektors - eine Situation, wie sie in Quantengraben auftritt. In Abhängigkeit davon, ob die Quantisierungsachse parallel oder senkrecht zur c-Achse steht, ergeben sich dabei zwei unterschiedliche Konstellationen.

Im Fall der C-Probe ist die Wachstumsrichtung entlang $[0001]$ und somit erfolgt die Quantisierung entlang der c-Achse der hexagonalen Einheitszelle, also entlang der Quantisierungsachse von j_z , der Projektion des Gesamtdrehimpulses auf die c-Achse (s. Abb. 4.9a)). Es kommt zu keiner Mischung der Orbitale um $\mathbf{k} = 0$.

Charakteristisch für die M-Probe (Abb. 4.9(b)), erfolgt die Quantisierung in diesem Fall jedoch in y-Richtung ($[1\bar{1}00]$), senkrecht zur Quantisierungsachse von j_z . Dies führt zu einem Mischen der p -Orbitale für $\mathbf{k} = (k_x, k_z) = 0$ und bedeutet eine Einmischung von p_z -Orbitalen auch für A-Exzitonen. Daraus folgt, dass auch für die Emission der A-Exzitonen ein gewisser Anteil π -polarisierten Lichtes erwartet werden kann. Die Einmischung nimmt mit abnehmender Quantengrabenbreite immer mehr zu. Ihre Stärke kann dabei aus dem sich durch das Konfinement ergebenden Erwartungswert des betroffenen Wellenvektors $\langle |k_y| \rangle = \int_{-\infty}^{\infty} |k_y| |\tilde{\varphi}_y(k_y)|^2 dk_y$ abgeschätzt werden, wenn man entsprechende Rechnungen aus der Literatur zur Hilfe nimmt. Dabei entspricht $\tilde{\varphi}_y(k_y)$ der in den \mathbf{k} -Raum fouriertransformierten Wellenfunktion der Löcher im Quantengraben $\chi_h(y)$ (dargestellt in Abb. 4.4(b)). Für die Probe hier mit 5 nm Grabenbreite ergibt sich ein Erwartungswert von $\langle |k_y| \rangle \approx 0.4 \text{ nm}^{-1}$.

Niwa *et al.* [101] berechneten die \mathbf{k} -Abhängigkeit des Mischungsverhältnisses der einzelnen Orbitale für alle drei Subvalenzbänder von hexagonalem GaN. Aus den genannten Rechnungen für die A-Zustände folgt darauf hin eine ca. 10-prozentige Einmischung der p_z -Orbitale. Diese Größe stimmt mit dem für die M-Probe experimentell ermittelten Polarisationsgrad von 90% sehr gut überein.

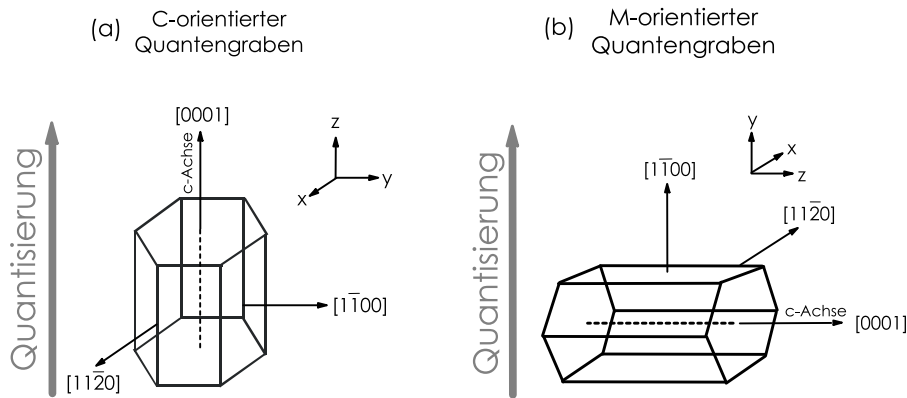


Abbildung 4.9: Konfinementeffekte in hexagonalen Quantengrabenstrukturen für (a) c-orientiertes GaN und (b) GaN mit m-Orientierung.

Bisher ist diese durch das Konfinement hervorgerufene Mischung der Orbitale für Nitride eine rein theoretische gewesen, da senkrecht zur c -Achse orientierte GaN-Quantengräben bislang nicht realisierbar waren. Mit den hier durchgeführten Untersuchungen an der $[1\bar{1}00]$ -orientierten 15fach Quantengrabenstruktur konnte nun erstmals dieser Effekt auch experimentell beobachtet und sogar quantitativ bestätigt werden.

4.1.4 Charakteristisches Abklingverhalten der untersuchten Heterostrukturen

Die durch den Stark-Effekt hervorgerufene räumliche Trennung der Elektronen- und Lochwellenfunktionen im Quantengraben spiegelt sich auch im zeitlichen Verhalten der Ladungsträger und somit im Abklingverhalten der Lumineszenz wider. Deshalb sollen diese charakteristischen Eigenschaften der Proben nun vorgestellt und mit ihnen die entsprechenden Betrachtungen aus Abschnitt 4.1.1 quantitativ diskutiert werden.

Die InGaN/GaN-Strukturen mit unterschiedlichen Grabenbreiten

Mit zunehmender Breite eines Quantengrabens verringert sich die Überlappung der Wellenfunktionen von Elektronen und Löchern, was zu einer geringeren Übergangswahrscheinlichkeit führt. Dies ist in zeitaufgelösten Untersuchungen der PL sehr gut festzustellen. Die Emission der Proben wurde dafür unter ps-Anregung (36 ps, 76 MHz) untersucht. Die

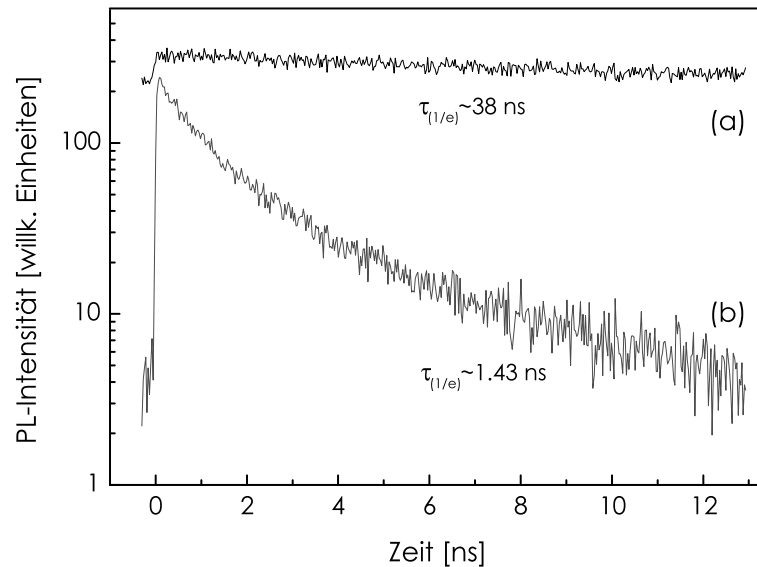


Abbildung 4.10: Zeitaufgelöste PL-Spektren im Lumineszenzmaximum der InGaN/GaN-Quantengrabenstrukturen mit (a) 5.9 nm und (b) 3.1 nm breiten Gräben bei $T = 5$ K und einer Ladungsträgerdichte pro Quantengraben von $n_{eh} = 2.3 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$. Die größere räumliche Trennung der Ladungsträger in der Probe mit den breiteren Gräben spiegelt sich im langsameren Abklingen der Lumineszenz wider.

zum Zeitpunkt $t = 0$ pro Quantengraben optisch induzierte Ladungsträgerdichte betrug ca. $2.3 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$. Nähere Angaben zum Experiment befinden sich in Abschnitt 3.2.1. Abbildung 4.10 zeigt die deutlich unterschiedlichen Abklingkurven der PL-Maxima bei der InGaN/GaN-Proben. Um die Lebensdauer quantitativ zu charakterisieren, ist die Zeit bestimmt worden, bei der die Intensität der Lumineszenz auf $1/e$ der Anfangsintensität ($t = 0$) gesunken ist. Die Probe (b) mit den schmaleren Gräben klingt mit $\tau = 1.43 \text{ ns}$ wesentlich schneller ab, als die Struktur mit 5.9 nm Quantengrabenbreite, deren $1/e$ Lebensdauer im experimentell zur Verfügung stehenden Zeitfenster von nur 13 ns nicht ermittelt werden konnte. Um auch hier Aussage über die Lebensdauer zu treffen, sind ein einfachexponentielles Abklingen angenommen und die Daten entsprechend angefitet worden. Für den Fitbereich wurde ein Zeitfenster von 2 ns direkt nach dem Anregungsimpuls ausgewählt. Es ergibt sich bei der hier vorhandenen Anregungsdichte eine Abklingzeit $\tau = 38 \text{ ns}$. Der Verlauf beider Transienten zeigt, dass die Lebensdauer bei fortschreiten der Zeit nicht konstant ist.

Die schwach erkennbare Veränderung von τ im Abklingprozess bei Probe (a) wird wesentlich deutlicher für die Probe mit den schmaleren Quantengräben (b). Die Lebensdauer wird zu späteren Zeitpunkten sichtbar größer. Eine Erklärung dafür ist, dass zu Beginn des Anregungsimpulses (auch bereits bei diesen geringen Anregungsdichten) die feldinduzierte Separation von Elektron- und Lochwellenfunktion, zumindest teilweise, kurzzeitig abgeschirmt wird. Im Laufe der Zeit nimmt die Separation und damit die Lebensdauer dann wieder zu, da durch die Rekombination der Ladungsträger immer weniger von ihnen für die Abschirmung der Felder bereit stehen.

Das bedeutet aber, dass eine Angabe der Lebensdauer, wie sie hier erfolgt ist, nur in grober Näherung richtig ist, da τ eine Funktion der sich zeitlich ändernden Ladungsträgerdichte darstellt. Eine genaue Analyse der Abhängigkeit der Lebensdauer von der Ladungsträgerdichte und die Problematik der Abschirmung der internen elektrostatischen Felder allgemein erfolgt in Abschnitt 4.2.2.

Die GaN/AlGaIn-Strukturen mit und ohne interne elektrostatische Felder

Um den Einfluss der Probenorientierung auf die Lebensdauer der Exzitonen zu untersuchen, wurden auch an den GaN/AlGaIn-Strukturen zeitaufgelöste PL-Messungen durchgeführt. Dazu sind die Proben unter ps-Anregung (3.5 ps , 76 MHz) mit einer Impulsenergie-dichte von $0.062 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ angeregt worden. Dies entspricht einer Ladungsträgerdichte von $4.3 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ pro Quantengraben. Weitere Details des Messaufbaus sind im Abschnitt 3.2.1 beschrieben.

Abbildung 4.11 zeigt das zeitliche Verhalten der PL im spektralen Intensitätsmaximum für beide Proben. Deutlich ist der Einfluss der elektrischen Felder auf die Wellenfunktionen von Elektron und Loch zu sehen. Es sind auch hier wieder die $1/e$ Lebensdauern ermittelt worden. Sie betragen rund 3.2 ns für die (0001)- und 450 ps für die (1 $\bar{1}$ 00)-Probe. Da die sich aus den Flächen unter den Transienten ergebende Gesamtausbeute beider Proben annähernd gleich ist, kann auf eine rein strahlende Rekombination beider Proben bei diesen tiefen Temperaturen geschlossen werden. Die Lebensdauern lassen sich

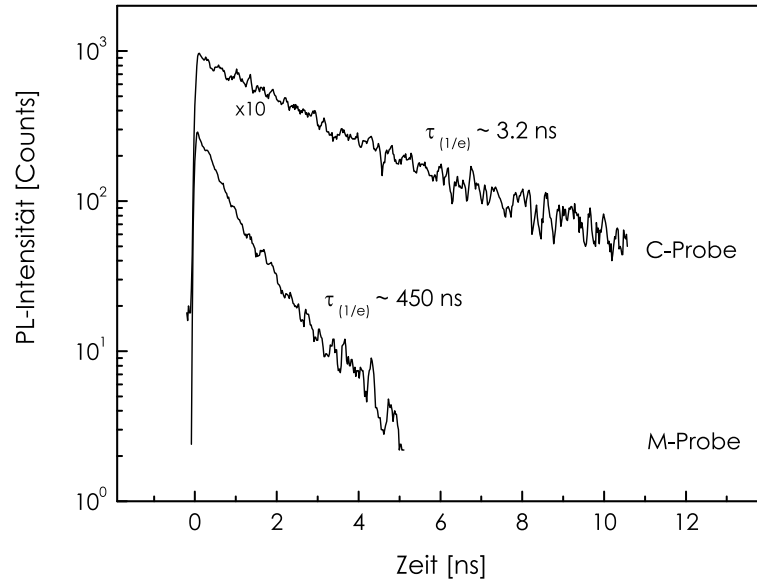


Abbildung 4.11: Zeitaufgelöste PL-Spektren im Lumineszenzmaximum für die (0001)- und die (1 $\bar{1}$ 00)-Mehrfachquantengrabenstruktur bei $T = 5$ K ($n_{eh} = 4.3 \times 10^9$ cm $^{-2}$ pro Quantengraben). Der Einfluss des elektrischen Polarisationsfeldes, die verringerte Überlappung der Wellenfunktionen von Elektron und Loch, auf das Zeitverhalten der PL ist anhand der deutlich langsamer abklingenden C-Probe zu sehen. Zur besseren Übersicht ist die Abklingkurve der c-orientierten Struktur mit Faktor zehn multipliziert.

direkt vergleichen.

Aus den Ergebnissen folgt, dass die M-Probe annähernd zehnmal schneller rekombiniert als die konventionelle C-Probe. Dies wiederum ist ein weiterer deutlicher Hinweis auf die „Feldfreiheit“ der m-orientierten Quantengrabenstruktur, da das Abklingverhalten der Proben ja Rückschlüsse auf die Situation der Ladungsträger in den Gräben zulässt. Wie Abb. 4.4 bereits darstellte, sind im Fall der C-Probe Elektronen und Löcher durch die elektrostatischen Felder stark separiert. Im Gegensatz dazu ist die M-Probe durch Flachbandzustände charakterisiert und die Überlappung der Wellenfunktionen beider Ladungsträger ist annähernd Eins. Die größere Überlappung ist in der experimentell ermittelten kürzeren Lebensdauer deutlich sichtbar.

Auffallend ist, dass die [0001]-Probe mit 3.2 ns wesentlich schneller rekombiniert, als die sehr ähnlich aufgebaute InGaN-Probe mit 5.9 nm Grabenbreite ($\tau = 38$ ns). Die Ursache ist die Abhängigkeit der Größe des piezoelektrischen Feldes vom Indiumgehalt im Quantengraben. Die mit steigendem Indiumgehalt zunehmende Verspannung in einem Quantengraben bewirkt eine Zunahme der piezoelektrischen Polarisierung und damit eine Zunahme des internen Feldes (beispielsweise [63]).

4.2 Untersuchungen von Abschirmeffekten durch optisch angeregte Ladungsträger

Die in der Literatur vorrangig diskutierte Abhängigkeit der Rekombination von der Quantengrabenbreite ist nur eine Möglichkeit, die Auswirkungen der piezoelektrischen Felder zu untersuchen. Im Folgenden wird zu diesem Aspekt der Einfluss der Ladungsträgerdichte sowohl auf das zeitaufgelöste, als auch auf das zeitintegrierte PL-Spektrum anhand experimenteller Untersuchungen näher betrachtet. Dies soll gleichzeitig einer Diskussion des Einflusses der Lokalisation von Exzitonen an stöchiometrischen Inhomogenitäten in den Quantengraben dienen.

4.2.1 Abhängigkeit des zeitlichen Verhaltens der Rekombination von der Ladungsträgerdichte im Niederdichtebereich

Beide Phänomene, interne elektrostatische Felder und die Lokalisation von Exzitonen an indiumreicheren Gebieten im Quantengraben, haben einen Einfluss auf die Rekombinationsdynamik. Während sich die Abschirmung der internen Felder aufgrund der sich durch die Rekombination ändernden Dichte an Ladungsträgern verringert und somit eine sich zeitlich vergrößernde Lebensdauer bewirkt, ist bei Stöchiometrieschwankungen die Lebensdauer einer Probe von der unterschiedlichen Dynamik der einzelnen Lokalisationsplätze abhängig. In beiden Fällen folgt ein nichtexponentielles Abklingen der Lumineszenz, wie es in Abb. 4.10 zu sehen ist.

Um daher genauere Aussagen über die Existenz und den Einfluss von beiden Effekten machen zu können, ist das Abklingverhalten in Abhängigkeit von der Anregungsdichte

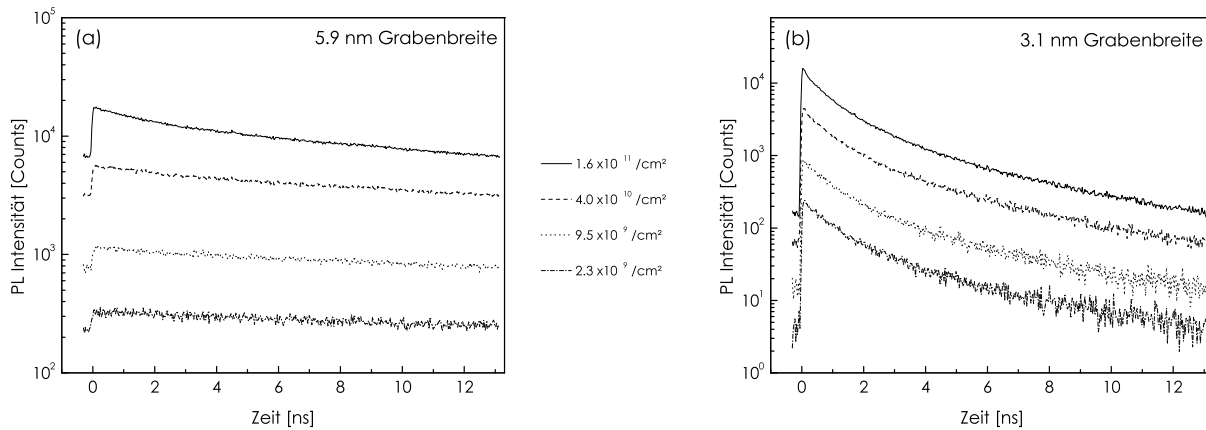


Abbildung 4.12: PL-Abklingkurven der 5.9 nm InGa_N/Ga_N-Quantengrabenstruktur (a) und der 3.1 nm Probe (b) in Abhängigkeit der Ladungsträgerdichte ($T = 5$ K). Deutlich sichtbar sinkt die Lebensdauer mit steigender Anregungsdichte, ein Zeichen für die zunehmende Abschirmung der elektrostatischen Felder.

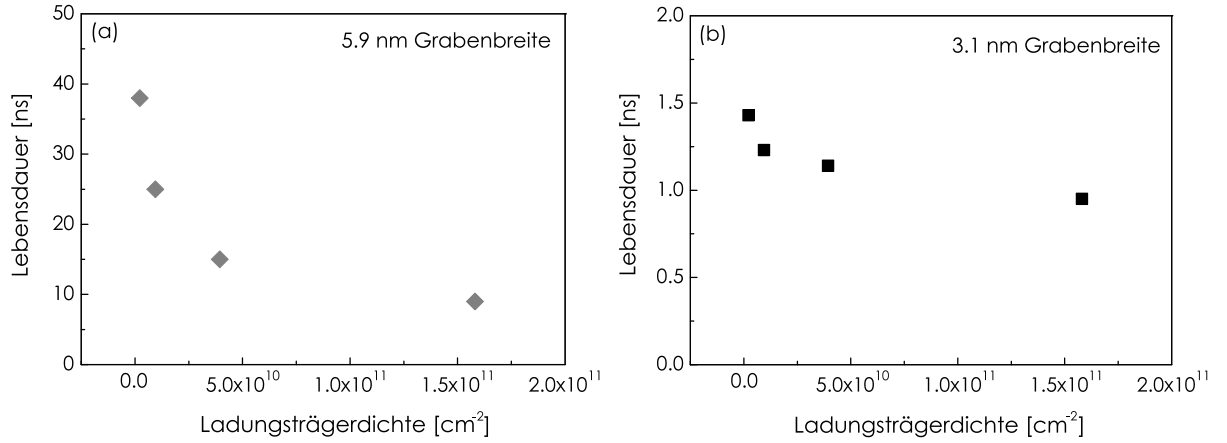


Abbildung 4.13: Qualitative Abhängigkeit der 1/e Lebensdauer der Ladungsträger von der Ladungsträgerdichte n_0 in der 5.9 nm InGaN/GaN-Quantengrabenstruktur (a) und der 3.1 nm Probe (b).

$\tau(n_{eh})$ analysiert worden. Dafür sind zeitabhängige PL-Messungen in Abhängigkeit von der Ladungsträgerdichte im experimentell realisierbaren Bereich von 10^9 bis 10^{11} cm^{-2} pro Quantengraben durchgeführt worden. Wie in Abschnitt 2.2.1 erläutert, befinden wir uns bei diesen Messungen mit der pro Impuls optisch angeregten Ladungsträgerdichte kurz unterhalb der für die untersuchten Strukturen abgeschätzten Mottdichte. Abbildung 4.12 zeigt einige der Transienten für beide Quantengrabenstrukturen. Die Abhängigkeit des Zeitverhaltens der Lumineszenz von der zum Zeitpunkt $t = 0$ erzeugten Ladungsträgerdichte ist klar erkennbar. Vor allem in (a) wird deutlich, dass die PL-Intensität I_{PL} bei höheren Ladungsträgerdichten wesentlich schneller abklingt.

Für eine weitere Diskussion ist es notwendig, zuerst die Zeitabhängigkeit der Lebensdauer genauer zu betrachten. Dafür wurde für jeden Transienten die Funktion $\tau(t)$ durch lokale Bildung der Ableitung von $I_{PL}(t)$ ermittelt. Bei einer Ladungsträgerdichte von $2.3 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ ergeben sich beispielsweise für die 5.9 nm Probe $\tau_{t=2ns} = 38 \text{ ns}$ und $\tau_{t=11ns} = 57 \text{ ns}$.⁹ Unter diesem Gesichtspunkt ist die Angabe einer Lebensdauer τ , definiert als die Zeit, bei der die Intensität auf 1/e nach $t = 0$ gesunken ist, nur in Hinblick auf eine qualitative Darstellung der Abhängigkeit von τ von der Ladungsträgerdichte n_0 sinnvoll.¹⁰ Diese Abhängigkeit zeigt Abb. 4.13 für beide Proben (5.9 nm Grabenbreite (a) und 3.1 nm Grabenbreite (b)). Das generelle Verhalten der Rekombination bei steigender Ladungsträgerdichte ist klar zu erkennen. Die Lebensdauer ist bei niedrigen Ladungsträgerdichten, vor allem in (a), relativ groß. Sie verringert sich mit zunehmender Dichte erst sehr schnell, nähert sich aber dann bei weiter steigender Ladungsträgerdichte einem endgültigen Wert an.

⁹Da für die Bildung der Ableitung zum Zeitpunkt t immer ein umgebendes Zeitintervall Δt nötig war, stellen die Zahlenwerte für τ eine Näherung in einem kleinen Zeitfenster um t dar.

¹⁰Entsprechend vorsichtig sind die in Abschnitt 4.1.4 genannten Zahlenwerte für τ zu behandeln.

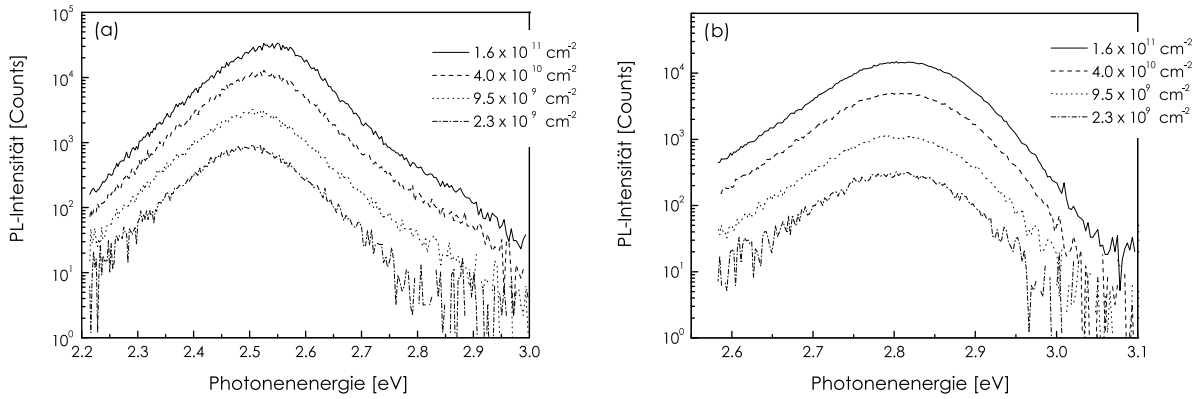


Abbildung 4.14: Zeitintegrierte PL-Spektren der InGaN/GaN-Heterostrukturen bei unterschiedlicher Ladungsträgerdichte entsprechend der Bedingungen bei den Abklingmessungen aus Abb. 4.12. (a) die Spektren der 5.9 nm breiten Quantengraben und (b) die der Probe mit den 3.1 nm breiten Gräben.

Parallel zu der Verkürzung der Lebensdauer mit zunehmender Anregungsdichte verändert sich auch die energetische Lage der Lumineszenz. In Abb. 4.14 ist zu erkennen, dass sich die PL-Bande, mit steigender Ladungsträgerdichte geringfügig zu höheren Energien verschiebt (5.9 nm Probe ca. 60 meV, 3.1 nm Probe ca. 20 meV). Dieses Verhalten kann einem zunehmend kompensierten QCSE zugeordnet werden und wird in Abschnitt 4.2.2 anhand weiterer Messungen ausführlich diskutiert.

Wie aus dem Verlauf der Transienten in Abb. 4.12 zu erkennen, sind beide Proben, vor allem die 5.9 nm Probe, in dem Zeitraum bis zum nächsten Anregungsimpuls (Impulsabstand 13 ns) nicht vollständig abgeklungen. Noch nicht alle erzeugten Ladungsträger sind rekombiniert, bevor durch den folgenden Impuls neue Ladungsträger generiert werden. Das bedeutet, dass die real existierende Ladungsträgerdichte nach einem Anregungsimpuls sich aus der Summe der neu generierten Ladungsträger und der noch vorhandenen Träger ergibt. Damit sind die in den Abbildungen angegebenen Werte für die Ladungsträgerdichte mit einem gewissen Fehler behaftet. Die Ermittlung des Zusammenhanges zwischen Rekombinationsrate und Ladungsträgerdichte erfordert eine exaktere Betrachtung der wirklich existierenden Situation in den Quantengraben. Sie wird im folgenden Abschnitt gegeben.

Genaue Analyse des dichteabhängigen Abklingverhaltens

Wenn die Abschirmung der elektrostatischen Felder in den Quantengraben allein bestimmend für das Abklingverhalten der untersuchten Proben wäre, müsste nur die Ladungsträgerdichte einen Einfluss auf die Lebensdauer haben. Demnach muss es möglich sein, unter Angabe der Funktion $\tau = f(n)$, einen allgemein gültigen Zusammenhang zwischen der PL-Intensität und der Zeit zu ermitteln. Diesem hätten dann beispielsweise auch die

Transienten in Abb. 4.12 zu folgen. Grundsätzlich gilt

$$I_{PL}(t) = C \frac{n(t)}{\tau(n)}, \quad (4.2)$$

mit der Rekombinationsrate $n(t)/\tau(n)$ und einem Proportionalitätsfaktor C .

Es soll davon ausgegangen werden, dass die strahlende Rekombination der dominante Rekombinationsprozess ist. Wenn $n_0\delta(t)$ der deltaförmigen Anregung durch den Laserimpuls entspricht, bedeutet das

$$\dot{n}(t) = n_0\delta(t) - \frac{n(t)}{\tau(n)}. \quad (4.3)$$

Um eine generell gültige Abklingfunktion $I_{PL}(t)$ definieren zu können, soll der Zusammenhang $\tau(n)$ aus dem experimentell ermittelten Abklingverhalten (s. Abb. 4.12) bestimmt werden.

Für eine korrekte Angabe von n_0 ergibt sich aus den experimentellen Ergebnissen die Notwendigkeit einer Fallunterscheidung. Da die 5.9 nm Quantengrabenprobe in den 13 ns zwischen zwei Anregungsimpulsen nicht vollständig abgeklungen ist, ist hier zu berücksichtigen, dass die Ladungsträgerdichte zum Zeitpunkt $t = 0$ sich aus der Summe der neu generierten Ladungsträger und einer unbekannten Zahl an noch verbliebenen Trägern, $n_0 + n'_0$, ergibt.

Im Fall der 3.1 nm Probe, die im Zeitraum zwischen den Impulsen auf ca. 1% der PL-Intensität abgeklungen ist, soll die verbleibende Menge an Ladungsträgern vernachlässigt werden. Es soll gelten $n(-0) = 0$. Mit diesen einfacheren Fall soll zunächst begonnen werden.

Analyse der 3.1 nm Quantengrabenstruktur Den Gleichungen 4.2 und 4.3 entsprechend kann man schreiben

$$\dot{n}(t) = n_0\delta(t) - \frac{1}{C}I_{PL}(t). \quad (4.4)$$

Da generell gilt $n(t + T) = n(t)$, mit T der Periode der Anregung, also dem Zeitraum zwischen zwei Laserimpulsen, ergibt sich bei Integration von Gleichung 4.3 über eine Periode T

$$0 = n_0 - \frac{1}{C} \int_0^T I_{PL}(t) dt. \quad (4.5)$$

Über diese Gleichung kann bei Kenntnis von n_0 und dem aus den Abklingkurven bestimm-
baren Integral die Konstante C als Funktion von n_0 ermittelt werden.

Nun werden zu verschiedenen Zeitpunkten t_x aus den Transienten die dazugehörigen Größen $\int_0^{t_x} I_{PL} dt$ ermittelt. Es gilt

$$n(t_x) = n_0 - \frac{1}{C} \int_0^{t_x} I_{PL}(t) dt. \quad (4.6)$$

Aus den bereits erwähnten $\tau(t)$ Kurven die durch lokale Bildung der Ableitung der Transi-
enten bestimmt wurden, können die jeweiligen $\tau(t_x)$ abgelesen werden. Die so für die unter-
schiedlichen Transienten aus Abb. 4.12 bei diversen t_x erhaltenen Wertepaare $[\tau(t_x), n(t_x)]$

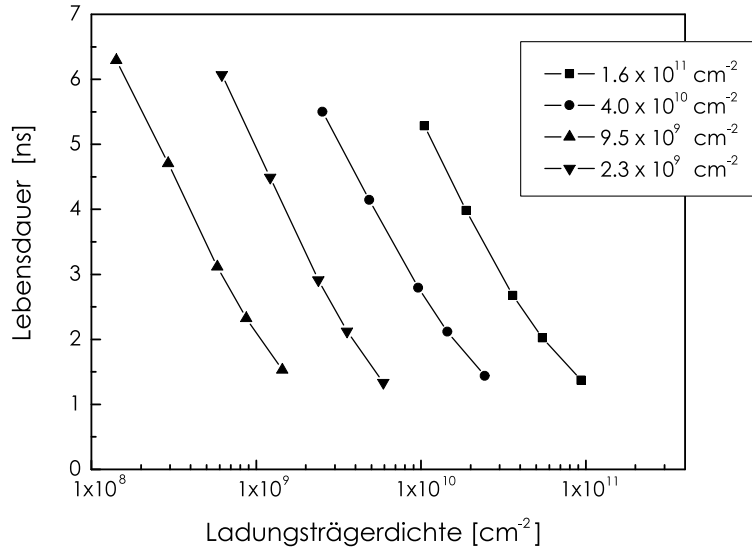


Abbildung 4.15: Abhängigkeit der Lebensdauer der 3.1 nm Quantengrabenprobe von der Ladungsträgerdichte bei unterschiedlichen zum Zeitpunkt $t = 0$ generierten Ladungsträgerdichten n_0 . Der fehlende eindeutige Zusammenhang zwischen τ und n weist auf einen weiteren das Abklingverhalten beeinflussenden Prozess in der Probe hin.

sind in Abbildung 4.15 gezeigt. Es sind die jeweiligen Lebensdauern τ über einer logarithmierten n -Achse aufgetragen. Deutlich ist zu sehen, dass die sich für die unterschiedlichen n_0 ergebenden Kurven keinen gemeinsamen Verlauf haben. So ergeben sich für eine Ladungsträgerdichte mehrere Lebensdauern, abhängig von der zum Zeitpunkt $t = 0$ erzeugten Ladungsträgerdichte n_0 . Die untersuchte Probe verhält sich somit unterschiedlich: Je nachdem, ob durch einen wiederholten Impuls Ladungsträger in einer bestimmten Dichte generiert werden oder ob - bildlich gesehen - durch das Entleeren eines großen Reservoirs an Ladungsträgern die selbe Dichte in der Probe erreicht wird.

Dieses Verhalten ist der Beweis, dass die unterschiedliche Abschirmung der internen Felder bei verschiedenen Ladungsträgerdichten bei der Probe mit den 3.1 nm breiten Gräben nicht die allein bestimmende Größe für das Abklingverhalten bildet. Diese Abhängigkeit der Lebensdauer τ sowohl von t als auch von n_0 kann nur durch die stöchiometrischen Schwankungen in der Zusammensetzung des Quantengrabens erklärt werden. In einem durch die Lokalisation dominierten Prozess, ist es möglich, dass bei einer impulsförmigen Anregung sowohl Lokalisationsplätze besetzt werden, mit nachfolgend langsamer Rekombination, als auch Quantengrabenzustände gefüllt werden, mit anschließender Rekombination daraus. Eine solche Situation führt zu einer Abhängigkeit der Rekombination von der ursprünglichen Ladungsträgerdichte n_0 , da das Besetzen der Zustände an beiden Orten durch die unterschiedlich schnellen Einfüllprozesse und Sättigungseffekte (Lokalisationsplätze) beeinflusst wird.

In der Literatur wird die durch Stöchiometrieschwankungen hervorgerufene Lokalisation von Ladungsträgern für dünne InGaN-Quantengraben um 3 nm Dicke als nicht zu ver-

nachlässigen gegenüber dem Einfluss der piezoelektrischen Felder gesehen. Dies würde im Rahmen dieser Arbeit die Probe mit den 3.1 nm dicken Gräben betreffen. Walte-
reit *et al.* [55] schließt für genau diese Probe aus der Temperaturabhängigkeit der strah-
lenden Lebensdauer, dass für tiefe Temperaturen, wie sie in unseren Experimenten vor-
herrschten, die Rekombination im Wesentlichen durch lokalisierte Zustände an Indium-
Inhomogenitäten des ternären Quantengrabens bestimmt wird. Diese Aussagen stützen
die hier gemachten Beobachtungen zum Abklingverhalten der Probe mit den schmaleren
Quantengräben.

Analyse der 5.9 nm Quantengrabenstruktur Bei einer Diskussion der Probe mit den
breiteren Quantengräben kann die zum Zeitpunkt $t = 0$ noch verbliebende Restladungs-
trägerdichte n'_0 nicht vernachlässigt werden. Es gilt hier $n(-0) = n'_0 \neq 0$. Analog Gleichung 4.6 gilt demzufolge

$$n(t) = n_0 + n'_0 - \frac{1}{C} \int_0^t I_{PL}(t) dt. \quad (4.7)$$

Die Gleichung 4.7 enthält neben der Konstanten C eine zweite Unbekannte, die Restla-
dungsträgerdichte n'_0 . Aufgrund der Unbestimmbarkeit von n'_0 ist eine Weiterführung der
Diskussion mit der Bestimmung der Zusammenhanges von τ und n für die 5.9 nm Probe
mit den vorliegenden experimentellen Daten nicht möglich.

Den Aussagen in der Literatur zufolge, haben bei InGaN-Quantengräben mit Grabenbrei-
ten größer als 3 nm, die Zusammensetzungsfluktuationen kaum noch einen Einfluss auf
die Rekombinationseigenschaften. Im Gegensatz zu der Probe mit den schmalen Quanten-
gräben ist für diese Probe also ein genereller, allgemein gültiger Zusammenhang von Le-
bensdauer und Ladungsträgerdichte zu erwarten. Ein solcher Nachweis wäre über zeitauf-
gelöste, ladungsträgerdichteabhängige PL-Messungen möglich, wenn im experimentellen
Aufbau die einzelnen Anregungsimpulse separiert werden und damit ein vollständiges
Abklingen der PL-Intensität erfasst werden kann.

4.2.2 Abhängigkeit der Übergangsenergie und der Lumineszenzintensität von der Ladungsträgerdichte oberhalb der Mottdichte

Im Gegensatz zu den bisher diskutierten Ergebnissen, bei denen die Dichte der angeregten
Ladungsträger immer unterhalb der Mottdichte lag, ist hier und in den weiteren Betracht-
ungen die experimentelle Situation der vorgestellten Untersuchungen eine andere. Die
im Versuch pro Quantengraben erzeugte Ladungsträgerdichte lag deutlich oberhalb der
in Abschnitt 2.2.1 abgeschätzten Mottdichte von ca. 10^{11} cm^{-2} .

Die Abhängigkeit der PL-Intensität von der Anregungsdichte Abbildung 4.16 zeigt
die zeitintegrierten Photolumineszenzspektren beider InGaN-Proben in Abhängigkeit von
der Anregungsdichte. Diese wurde im Bereich von 10 kW/cm^2 bis 3.7 MW/cm^2 variiert,

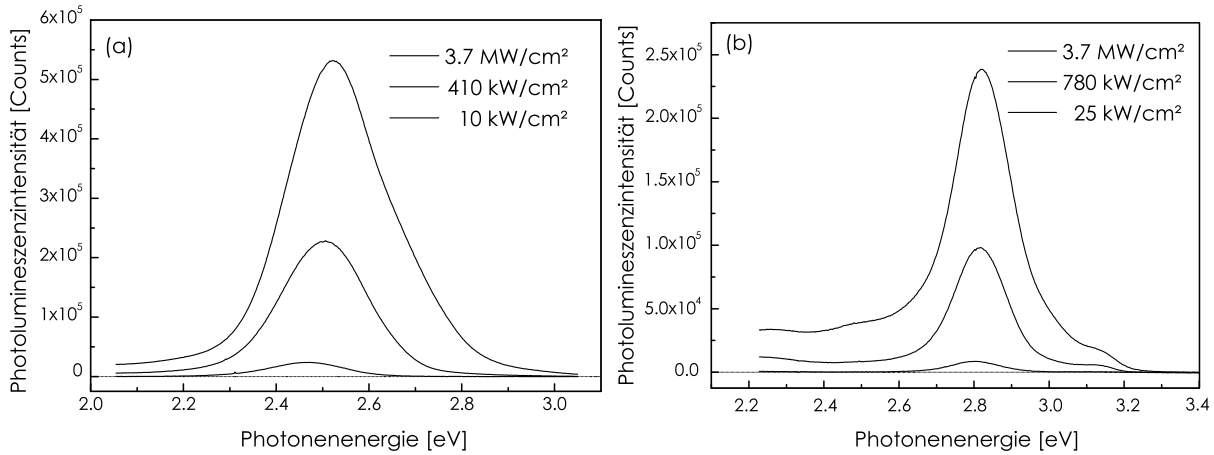


Abbildung 4.16: Zeitintegrierte Photolumineszenzspektren der InGaN/GaN-Quantengrabenstrukturen mit (a) 5.9 nm und (b) 3.1 nm Grabenbreiten als Funktion der Anregungsdichte ($T = 5$ K). Die eintretende Abschirmung der Felder mit zunehmender Dichte zeigt sich in einer Blauverschiebung des PL-Bande.

was Ladungsträgerdichten oberhalb 10^{12} cm^{-2} pro Quantengraben entspricht (experimentelle Details in Abschnitt 3.2.2). Zur klareren Darstellung sind jeweils nur drei Spektren gezeigt. In Abb. 4.16(a) ist die Lumineszenz der Probe mit 5.9 nm breiten Quantengraben zu sehen, in (b) die der Probe mit 3.1 nm breiten Gräben.

Um den Zusammenhang zwischen PL-Intensität und Anregungsdichte, $I_{PL} = C I_{ex}^{\kappa}$, genauer zu untersuchen, wird üblicherweise eine doppellogarithmische Darstellung verwendet. Dadurch ist der Exponent κ direkt als Anstieg abzulesen (C ist die Proportionalitätskonstante). Abbildung 4.17 zeigt eine solche Darstellung für die InGaN-Proben. Es ist zu erkennen, dass die Lumineszenzintensität nur bei geringen Anregungsdichten linear mit der Dichte zunimmt ($\kappa = 1$). Oberhalb 10^5 W/cm^2 folgt die Lumineszenz der Dichte nur noch sublinear ($\kappa < 1$). Dieses Phänomen ist bei *allen* (Al,In,Ga)N-Heterostrukturen beobachtet worden. Je nach Probe schwankt κ im Bereich von 0.42 und 0.60.

Dieses Verhalten ist grundsätzlich auch für die Gesamtintensität der PL (spektral integriert) festzustellen. Allerdings ist bei der 3.1 nm InGaN-Probe in Abb. 4.16(b) zu erkennen, dass sich der niederenergetische Ausläufer der PL-Bande im Verhältnis zum übrigen Teil des Spektrums mit steigender Ladungsträgerdichte überproportional erhöht. Dabei zeigt die Normierung auf die Anregungsdichte, dass dieser Bereich der Bande 1 : 1 der Anregungsdichte folgt, während der Hauptteil des Spektrums ab einer bestimmten Anregungsdichte deutlich weniger stark an Intensität zunimmt. Deshalb ist in Abb. 4.17 die jeweilige Intensität des PL-Maximums beider Proben abgebildet.

Als Ansatz für eine Erklärungssuche dieses sehr ungewöhnlichen Verhaltens soll die Rekombinationsstatistik dienen. Mit ihr werden die möglichen Rekombinationspfade mit statistischen Größen, wie Übergangsraten, Wirkungsquerschnitten und Lebensdauern beschrieben.

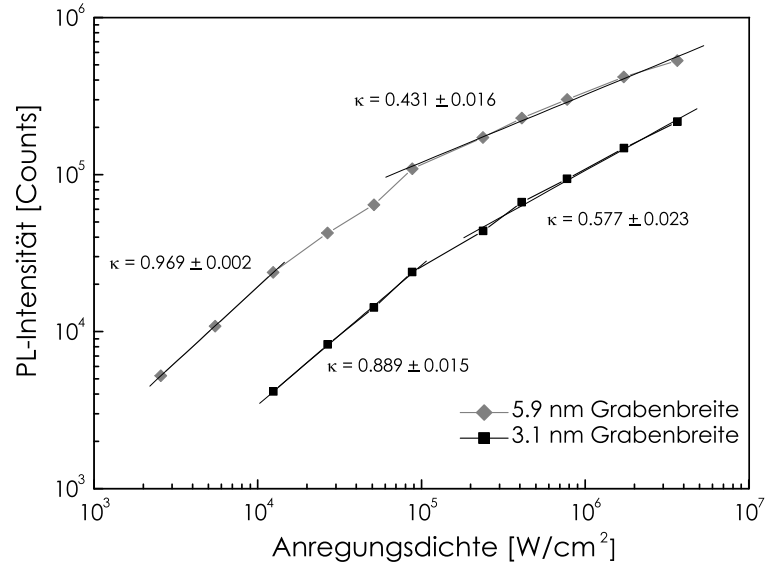


Abbildung 4.17: Die doppeltlogarithmisch dargestellte Abhängigkeit der PL-Intensität der beiden InGaN/GaN-Quantengrabenstrukturen als Funktion der Anregungsdichte. Die unterschiedlichen Anstiege der linearen Fits kennzeichnen die Bereiche für scheinbar rein strahlende Rekombination ($\kappa \approx 1$) und für vorhandene Konkurrenzprozesse ($\kappa < 1$).

Im stationären Fall sind die Generationsrate G und die Rekombinationsraten gleich groß, also

$$G = B_{sp}np + An^2p + \dots \quad (4.8)$$

(siehe z. B. Landsberg [102]). Dabei beschreibt der erste Term die spontane Rekombination mit dem Rekombinationskoeffizienten B_{sp} und der Anzahl der Elektronen und Löcher, n und p , und der zweite einen Auger-Effekt als eine Möglichkeit der nichtstrahlenden Rekombination (Koeffizient A). Für den Fall, dass die Zahl der Elektronen gleich der der Löcher ($n = p$) ist, ist die Generationsrate proportional der spontanen Emission, also proportional n^2 . Aus Gleichung 4.8 folgt unter Annahme einer rein spontanen Rekombination $\ln(PL_{spont.}) \sim \ln G$ (Vernachlässigung des zweiten Terms). In einer doppellogarithmischen Darstellung, wie sie in Abb. 4.18 abgebildet ist, wird also eine Gerade mit dem Anstieg $\kappa = 1$ erwartet. Wie man sieht, kann ein anderer Rekombinationsmechanismus zu anderen Proportionalitäten führen. So würde bei reinen Augerprozessen G proportional dem Kubik der Zahl der Ladungsträger sein. Für die detektierte Lumineszenz ($PL \sim n^2$) hätte dies dann $\kappa = \frac{2}{3}$ zur Folge.

Betrachtet man die Ergebnisse in Abb. 4.17, sind also folgende Fälle als Ursachen möglich. Entweder tritt mit höherer Ladungsträgerdichte ein zweiter strahlender Rekombinationsprozess auf (spontan oder stimuliert), der mit den Messungen nicht erfasst wurde, oder ein nichtstrahlender Konkurrenzprozess findet statt. Nichtstrahlende Prozesse sind prinzipiell

möglich, jedoch konnten keine eindeutigen Hinweise darauf gefunden werden¹¹.

Im Gegensatz dazu sind die Spektren in Abb. 4.16(b) ein klarer Hinweis auf einen strahlenden Konkurrenzprozess, der mit der Messung nicht vollständig erfasst wurde. Aufgrund der endlichen Ausdehnung des Anregungsfleckes tritt ab einer Ladungsträgerdichte von ca. 10^{13} cm^{-2} bereits stimulierte Emission von Licht auf (laterale ASE). Da diese jedoch sofort wieder in der Probe (beispielsweise in der Pufferschicht oder im Substrat) absorbiert wird, ist sie im Lumineszenzspektrum nicht zu sehen und nur im niederenergetischen Ausläufer der PL-Bande als eine Emission des Substrates zu erkennen, welches durch die stimulierte Emission aus dem Quantengraben gepumpt wurde. Der gesamte Prozess spiegelt sich bei der Untersuchung der Abhängigkeit der PL-Intensität von der Anregungsdichte in der bei hohen Ladungsträgerdichten verringerten Lumineszenzausbeute wider. Weitere deutliche Hinweise auf einen solchen Prozess geben die Untersuchungen der stimulierten Emission an den Proben in Abschnitt 4.3.1 sowie die Betrachtungen zur Wellenführung in Abschnitt 4.4.

Aus den oben genannten Betrachtungen ergibt sich eine wichtige Konsequenz für diese Arbeit: Die quantitative Bestimmung der Dichte der Ladungsträger pro Quantengraben, die zur strahlenden Rekombination beitragen, analog Abschnitt 2.2.1, kann nur für den Dichtebereich erfolgen, in dem mögliche Konkurrenzprozesse ausgeschlossen werden können. Oberhalb der Anregungsdichte, ab der die Prozesse sichtbar werden, also oberhalb etwa 10^5 W/cm^2 , ist diese Ladungsträgerdichte nicht mehr bestimmbar. Deshalb ist ab diesem Abschnitt immer die Anregungsdichte angegeben.

Spektrale Abhängigkeit der PL Deutlich ist in Abb. 4.16(a) die Blauverschiebung des PL-Maximums mit zunehmender Dichte an induzierten Ladungsträgern zu erkennen, die mit 70 meV für die 5.9 nm Probe hier wesentlich stärker ist, als für die Probe mit den dünneren Gräben in (b) (17meV). Für eine bessere Verdeutlichung der spektralen Abhängigkeit der PL von der Anregungsdichte ist in Abb. 4.18 die jeweilige Übergangsenergie des PL-Maximums gegen die Dichte aufgetragen.

Wie man sieht, schieben die Lumineszenzmaxima bei niedrigen Anregungsdichten zunächst rasch ins Hochenergetische, um dann oberhalb 10^5 W/cm^2 in eine Art Sättigung überzugehen. Die zunehmende Zahl an optisch induzierten Ladungsträgern schirmt die internen elektrostatischen Felder immer weiter ab, d.h. die Stokesverschiebung wird mehr und mehr kompensiert.

Deutlich zu sehen, ist auch hier, in Abb. 4.18, die Proportionalität der zu kompensierenden Stokesverschiebung zur Breite der Quantengräben. Für die Probe mit den schmaleren Gräben wird eine wesentlich geringere Rotverschiebung kompensiert, als bei der Probe mit einer Quantengrabenbreite von 5.9 nm.

Es fällt auf, dass die Übergangsenergie bei hohen Anregungsdichten sich nicht den in Abschnitt 4.1.1 berechneten Werten für feldfreie Quantengräben von 3.16 eV bzw. 3.10 eV

¹¹Augerprozesse sind bei breitlückigen Halbleitern eher unwahrscheinlich. Die Auger-Rekombinationsrate nimmt mit zunehmender Bandlücke stark ab [85].

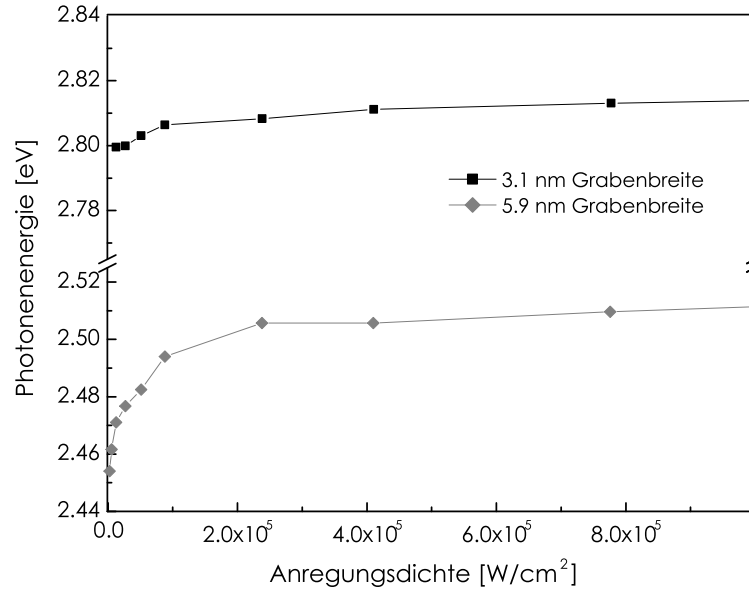


Abbildung 4.18: Die Übergangsenergie der beiden InGa_N/Ga_N-Quantengrabenstrukturen als Funktion der Anregungsdichte. Beide Proben zeigen das gleiche Verhalten, wobei bei der 5.9 nm Quantengrabenprobe eine größere Stokesverschiebung kompensiert werden muss.

annähert, sondern zu wesentlich geringeren Energien (2.815 eV bzw. 2.515 eV) konvergiert. Außerdem weicht die für den Sättigungsfall experimentell ermittelte Energiedifferenz zwischen den beiden Proben von ca. 300 meV deutlich von einer Flachbandsituation mit 60 meV ab.

Eine mögliche Ursache für diese Abweichungen kann die BGR sein. Bei den hier vorliegenden Anregungsdichten führen die jeweiligen Coulomb-Wechselwirkungen der Ladungsträger in Valenz- und Leitungsband zu einer großen Reduzierung der Bandlücke. Die theoretischen Flachbandwerte gelten nur für sehr niedrige Ladungsträgerdichten¹² von $9 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ eine Verringerung der Bandlücke $\Delta E_g \approx 200 \text{ meV}$ (idealer 2D-Fall, mit $a_{Bx} = 3 \text{ nm}$ und $E_x^b = 28 \text{ meV}$ [36]). Entsprechend Gleichung 2.17 und Tabelle 4.1 ergeben sich dabei (im idealen 2D-Fall und $T = 0 \text{ K}$) die chemischen Potenziale der Elektronen und Löcher $\mu_e = 114 \text{ meV}$ und $\mu_h = 22 \text{ meV}$. Es ist in dem Beispiel also für den Fall der vollständigen Abschirmung der elektrostatischen Felder bei dieser Ladungsträgerdichte für die Probe mit den 3.1 nm breiten Quantengräben eine Übergangsenergie in dem Bereich von $3.16 \text{ eV} - \Delta E_g = 2.96 \text{ eV}$ bis maximal $2.96 \text{ eV} + \mu_e + \mu_h = 3.10 \text{ eV}$ zu erwarten.

Bei der Probe mit den 5.9 nm breiten Gräben ändert sich die Übergangsenergie kaum noch ab einer Anregungsdichte von etwa 150 kW/cm^2 , was aufgrund der größeren Lebensdauer der Probe (Annahme $\tau_{eh} \approx 2.5 \text{ ns}$) hier einer Ladungsträgerdichte von etwa $3 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ entsprechen würde. Da allerdings, wie im vorigen Abschnitt erläutert, in diesem Dichte-

¹²Entsprechend $I_0 = 10^5 \text{ W/cm}^2$ und einer angenommenen Lebensdauer der 3.1 nm Probe von $\tau_{eh} = 1.0 \text{ ns}$.

bereich bereits ein Konkurrenzprozess zur spontanen Emission auftritt ($\kappa < 1$), ist die reale Ladungsträgerdichte im Quantengraben geringer. Durch die Unbestimmbarkeit dieser Dichte ist eine BGR-Abschätzung an dieser Stelle nicht möglich.

Für die 3.1 nm Probe tritt eine deutliche Abweichung zwischen dem experimentellen Ergebnis und der unter Berücksichtigung der BGR bestimmten Übergangsenergie auf. Ebenso ist davon auszugehen, dass die Verringerung der Bandlücke bei der 5.9 nm Probe kleiner als 300 meV¹³ ist. Somit ist auch bei dieser Probe experimentell eine wesentlich geringere maximale Übergangsenergie festzustellen als rechnerisch abschätzbar.

Zwar deutet sich speziell bei der 5.9 nm Probe an, dass im untersuchten Dichtebereich, also auch oberhalb 150 kW/cm², noch kein eindeutiger Sättigungswert existiert, doch ist klar erkennbar, dass auch mit der BGR diese deutliche Abweichung der sich einstellenden Sättigungswerte von der Flachbandsituation in beiden Fällen nicht erklärbar ist.

Der beobachtete Sättigungseffekt, energetisch weit unterhalb der für Flachbandbedingungen ermittelten Übergangsenergien, kann durch die Schlussfolgerungen aus der Abhängigkeit der PL-Intensität von der Ladungsträgerdichte erklärt werden. Der sich aus dem nur sublinearen Anstieg der PL für hohe Anregungsdichten andeutende Konkurrenzprozess zur detektierten PL (Abb. 4.17), baut einen Teil der angeregten Ladungsträger ab. Die Zahl der zur Abschirmung zur Verfügung stehenden Ladungsträger wächst damit oberhalb von 10⁵ W/cm² nur noch sehr gering, wodurch eine weitere Kompensation der internen Felder und die dementsprechend weitere Blauverschiebung abgeschwächt wird. Eine Flachbandsituation wird so nicht erreicht. Dies erklärt auch den Unterschied in der Energiedifferenz beider PL-Maxima zwischen Experiment und Flachbandwerten.

Ladungsträgerdichteabhängiges Verhalten der GaN/AlGaN-Heterostrukturen Bisher sind nur an den InGaN/GaN-Quantengrabenstrukturen die Lumineszenzspektren in Abhängigkeit von der induzierten Ladungsträgerdichte diskutiert worden. Aber auch an der konventionell [0001]-orientierten GaN/AlGaN-Struktur sollten die beobachteten Abschirmeffekte auftreten, da davon auszugehen ist, dass in der Probe ebenfalls piezoelektrische Felder vorhanden sind (s. Abschnitt 4.1.2). Im Falle der „feldfreien“ M-Probe muss dagegen angenommen werden, dass mit zunehmender Ladungsträgerdichte allein die BGR einen Einfluss auf die energetische Lage der Emission hat und eine Rotverschiebung mit steigender Dichte sichtbar wird. Zur Überprüfung dieser Annahmen und zum Vergleich mit den InGaN/GaN-Proben wurde deshalb auch bei den beiden GaN/AlGaN-Proben die Abhängigkeit der PL von der Anregungsdichte untersucht. Es wurde der gleiche experimentelle Aufbau verwendet.

Abbildung 4.19(a) zeigt die PL-Spektren der [0001]-orientierten GaN/AlGaN-Probe bei unterschiedlichen Anregungsdichten im Bereich von 200 kW/cm² bis 12.5 MW/cm². Die Spektren sind wieder geringfügig durch Interferenzen beeinflusst. Da genau am Ende des hochenergetischen Ausläufers der Lumineszenzbande die spektrale Empfindlichkeit der hier verwendeten Messapparatur sprunghaft abnimmt, führt die diesbezügliche Korrektur

¹³Dieser Betrag ergäbe sich bei einer Ladungsträgerdichte von $3 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$.

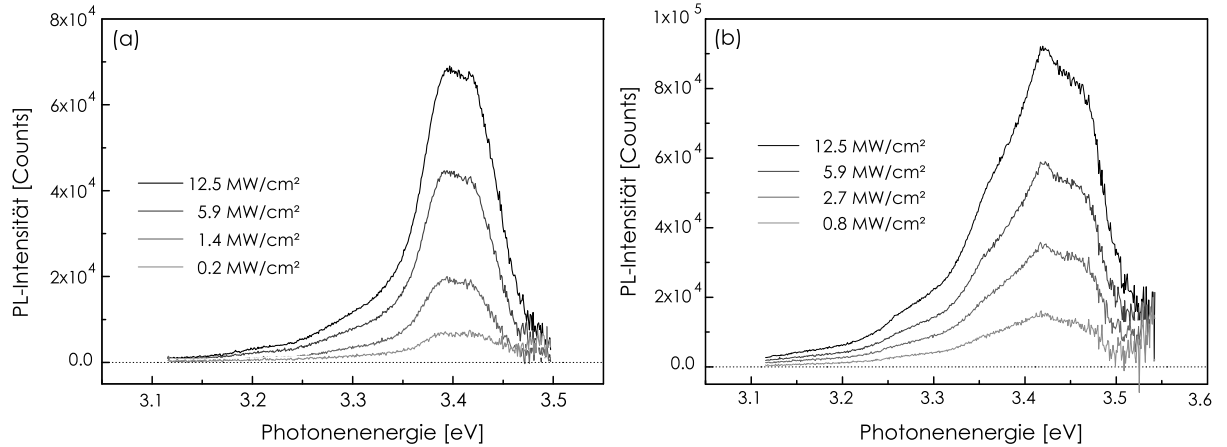


Abbildung 4.19: Zeitintegrierte Photolumineszenzspektren der [0001]-orientierten (a) und der [1100]-orientierten (b) GaN/AlGaIn-Heterostruktur in Abhängigkeit von der Anregungsdichte ($T = 5$ K).

der Messergebnisse zu einem stark verrauschten Signal oberhalb 3.46 eV.

Die sehr breiten Lumineszenzbanden verhindern eine genaue Bestimmung der Position des PL-Maximums. Es ist aber trotzdem zu erkennen, dass die Lumineszenz bei diesen vergleichsweise hohen Dichten bei ca. 3.40 eV liegt. Das ist die Übergangsenergie, die auch bei den niedrigen Ladungsträgerdichten aus Abschnitt 4.1.2 festgestellt wurde. Sie ist unabhängig von der in den Quantengraben erzeugten Ladungsträgerdichte. Eine Normierung der Spektren auf die maximale Lumineszenzintensität zeigt klar, dass mit Zunahme der Anregungsintensität keine Veränderungen der spektralen Lage und der Breite der PL-Bande auftreten. Es gibt weder Abschirmungseffekte noch Hinweise auf BGR-Effekte bzw. das Füllen der Bänder.

In Abb. 4.19(b) sind die Spektren der [1100]-orientierten Probe dargestellt. Da hier keine internen Feldern durch die Ladungsträger kompensiert werden, ist eine Verschiebung der Emissionsenergie zu größeren Energien nicht zu erwarten. Im Gegenteil, die BGR sollte zu einer Rotverschiebung der Lumineszenzbande führen. Ungewöhnlicherweise ist auch für diese Probe eine Veränderung der Übergangsenergie mit steigender Ladungsträgerdichte nicht zu beobachten.

Die Abhängigkeit der PL der GaN/AlGaIn-Proben von der Ladungsträgerdichte zusammenfassend, kann man sagen, dass, entgegen den Erwartungen, die Lumineszenz der Proben weitestgehend unabhängig von der Anregungsdichte ist. Dies ist im Hinblick auf die zu erwartende Abschirmung der internen elektrostatischen Felder in der C-Probe überraschend und unterscheidet sich von den in der Literatur beschriebenen Beobachtungen für dieses Materialsystem (z. B. [49, 103, 104]).

Abbildung 4.20 zeigt in Zusammenhang mit der Variation der Anregungsdichte die bereits diskutierte Abhängigkeit der PL-Intensität aller untersuchten Proben von der Anregungsdichte, diesmal am Beispiel der GaN/AlGaIn-Proben. Die Lumineszenzintensität nimmt auch hier nicht im Verhältnis 1 : 1 mit steigender Anregungsdichte zu, sondern folgt in

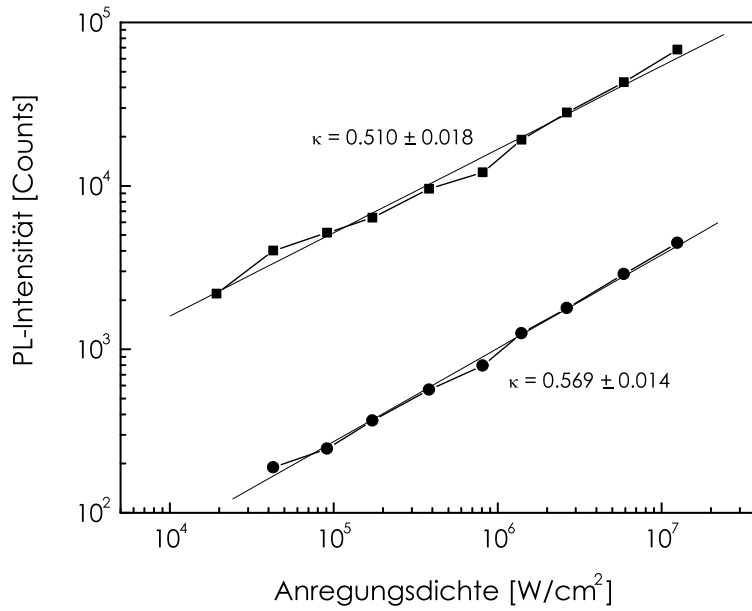


Abbildung 4.20: Die doppeltlogarithmisch dargestellte Abhängigkeit der PL-Intensität der [0001]-orientierten (Quadrate) und der [1100]-orientierten (Kreise) GaN/AlGaN-Proben als Funktion der Anregungsdichte. Über den gesamten Dichtebereich ist analog zu den InGaN/GaN-Proben für höhere Dichten ein Anstieg von $\kappa \approx 0.5$ festzustellen.

der doppellogarithmischen Darstellung der Dichte wieder sublinear mit einem Anstieg von $\kappa \approx 0.5$.

Daher kann für die C-Probe auf SiC angenommen werden, dass im gesamten Untersuchungsbereich der Anregungsdichte, analog zu den InGaN-Proben, ein Konkurrenzprozess zur detektierten PL auftritt. Die sich nicht verändernde energetische Lage der PL unterstützt diese Schlussfolgerung.

Da sich die M-Probe bei dem hier diskutierten Verhalten nicht von dem der [0001]-orientierten Strukturen unterscheidet, könnte auch hier die gleiche Ursache angenommen werden. Allerdings wäre für diese Probe eine Reabsorption, wie sie für die Proben auf SiC diskutiert wird, auf die Pufferschicht beschränkt. Das LiAlO_2 -Substrat absorbiert im untersuchten Spektralbereich nicht.

4.2.3 Das zeitlichen Verhalten der Rekombination der Ladungsträger bei Hochanregung oberhalb der Mottsdichte

Neben dem zeitabhängigen Verhalten des Photolumineszenzmaximums ist auch das zeitliche Verhalten der gesamten Lumineszenz nach einer impulsförmigen Anregung untersucht worden. Das dazu verwendete Messsystem wurde im Abschnitt 3.2.2 bereits vorgestellt. Zum Zeitpunkt $t = 0$ betrug die Ladungsträgerdichte deutlich über 10^{12} cm^{-2} pro Quantengraben (Anregungsdichte: $640 \text{ kW}/\text{cm}^2$) und lag somit klar oberhalb der in Abschnitt 2.2.1 abgeschätzten Mottsdichte von ca. 10^{11} cm^{-2} . Auch in diesen Messungen

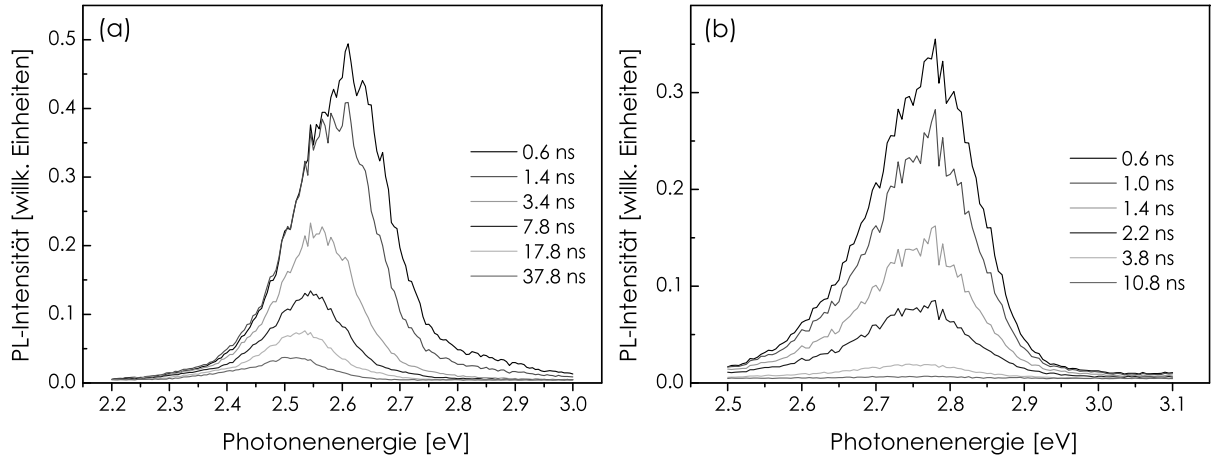


Abbildung 4.21: Zeitaufgelöste PL-Spektren der InGaN/GaN-Heterostrukturen mit (a) 5.9 nm und (b) 3.1 nm Quantengrabendicke bei $T = 5$ K. Die Spektren zeigen eine Rotverschiebung zu späteren Zeiten, was auf eine Verringerung der Abschirmung der internen Felder im Laufe der Zeit schließen lässt. Die Ladungsträgerdichte zum Zeitpunkt $t = 0$ lag deutlich oberhalb der Motttdichte.

besitzt die Probe mit den breiteren Quantengräben ein ausgeprägteres Verhalten.

Abbildung 4.21 zeigt die ermittelten Emissionsspektren der 5.9 nm (a) und der 3.1 nm (b) breiten Quantengrabenstrukturen jeweils zu sechs Zeitpunkten im Abklingprozess. Zu Beginn, also kurz nach dem Anregungsimpuls, ist die Lumineszenz in (a) bei 2.60 eV deutlich blauverschoben (90 meV) gegenüber der charakteristischen Emissionsenergie aus Abb. 4.1 bzw. auch gegenüber den Spektren in Abb. 4.14. Im Verlaufe des Abklingens schiebt dann die Lumineszenzbande ins Niederenergetische bis zu einer Photonenenergie von 2.51 eV, der Übergangsenergie für die Niederdichteanregung.

Zur besseren Verdeutlichung des Vorganges sind in Abb. 4.22 die energetische Lage und die spektral integrierte Intensität der Lumineszenz für beide Proben dargestellt. Kurz nach dem Anregungsimpuls ändern sich sowohl die spektrale Lage als auch die Peakintensität sehr rasch. Diese Änderung wird im Laufe der Zeit immer schwächer, die Peakposition konvergiert zu einer Übergangsenergie von 2.51 eV (5.9 nm Grabendicke) bzw. 2.75 eV (3.1 nm Grabendicke). Die Lumineszenzintensität nimmt, nach zunächst rascher Abnahme, ab ca. 4 ns (3.1 nm Grabendicke) bzw. 8 ns (5.9 nm Grabendicke) nur noch geringfügig weiter ab und deutet damit auf eine sehr langsame Rekombinationsrate in diesem Zeitbereich. Zum Vergleich mit den zeitaufgelösten PL-Messungen wurden aus der zeitabhängigen Abnahme der Intensität des PL-Maximums (analog Abb. 4.22(b), ohne Abbildung) wieder die $1/e$ Lebensdauern bestimmt. Sie betragen $\tau_{(1/e),5.9nm} = 5.9$ ns bzw. $\tau_{(1/e),3.1nm} = 1.0$ ns. Beide Werte liegen klar unterhalb der ermittelten Lebensdauern für die Niederdichteanregung aus Abschnitt 4.1.4, wo sich für $\tau_{(1/e)}$ entsprechend 38 ns bzw. 1.43 ns ergeben hatten.

Die Ergebnisse der zeitaufgelösten Messungen können nur durch das Vorhandensein der

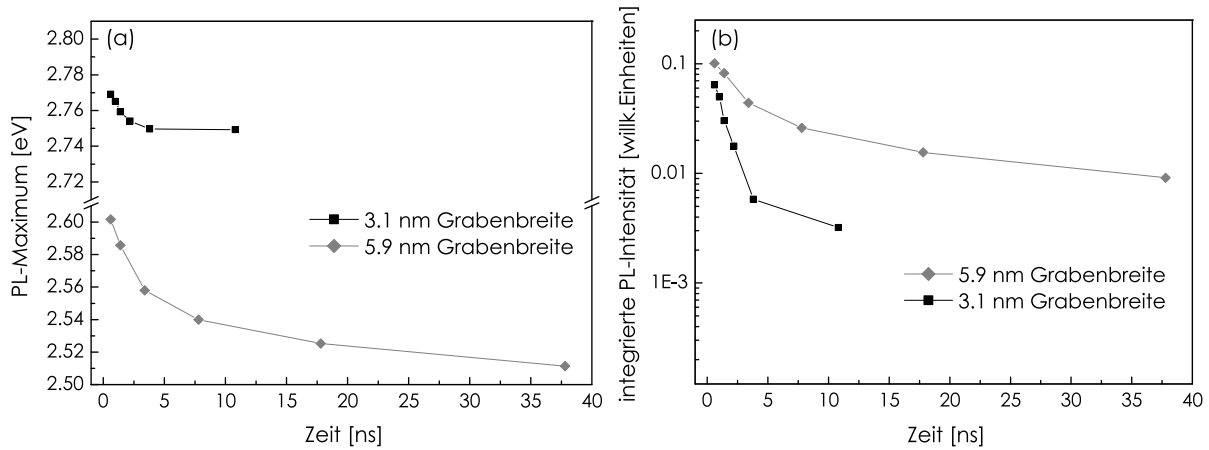


Abbildung 4.22: Einfluss der Quantengrabenbreite auf die Lage des Lumineszenzmaximums (a) und integrierte PL-Intensität (b) der beiden InGaN/GaN-Proben als Funktion der Zeit.

piezoelektrischen Felder in den Proben erklärt werden. Die durch den Anregungsimpuls optisch induzierten Ladungsträger bilden ein Abschirmungsfeld, das die internen Felder zumindest teilweise kompensiert. Dies führt sowohl zu einer Verringerung des Stokesverschiebung als auch zu einer Vergrößerung der Überlappung der Wellenfunktionen von Elektronen und Löchern. Ersteres resultiert in einer Blauverschiebung der Übergangsenergie, das Zweite in einer größeren Rekombinationsrate, also in kürzeren Lebensdauern. Die Stärke dieses Abschirmungsfelders reduziert sich nun im Laufe der Zeit, da sich die Zahl der Ladungsträger durch die Rekombination verringert. Dadurch wird die Wirkung der piezoelektrischen Felder wieder größer, die Emissionsenergie schiebt ins Niederenergetische und die Rekombinationsrate sinkt.

Wie in Abb. 4.22(a) zu sehen, liegt die Lumineszenzbande der 3.1 nm dicken Quantengrabenprobe beim ersten Messpunkt, $t = 0.6$ ns, bereits ca. 60 meV unterhalb der Emissionsenergie der charakterisierenden Messungen aus Abschnitt 4.1. Aufgrund der sehr kurzen Lebensdauer der Probe wird die für die Abschirmung der Felder benötigte Anzahl an Ladungsträgern sehr schnell reduziert. In den ersten 600 ps wird demzufolge vermutlich bereits eine Dichte erreicht, die wesentlich kleiner ist, als die niedrigste Anregungsdichte der anderen Messungen. Die „endgültige“ Übergangsenergie, bei keinerlei Abschirmung der Felder, entspricht dem zeitlichen Konvergenzwert von 2.75 eV aus Abb. 4.22(a). Diese Übergangsenergie wurde ebenfalls bei anderen Messungen mit sehr niedrigen Anregungsdichten erreicht.

Die sich im Laufe des Abklingprozesses einstellende Übergangsenergie für die Struktur mit den 5.9 nm breiten Quantengraben stimmt dagegen sehr gut mit der Emissionsenergie aus Abschnitt 4.1 überein.

4.3 Stimulierte PL und Gewinnmessungen

Trotz der vielen offenen Fragen zu den Rekombinationsmechanismen in Gruppe-III-Nitriden, hat sich das große Potenzial dieses breitlückigen Materialsystems für im Kurzwelligen emittierende optische Bauelemente bereits mehrfach im erfolgreichen Betrieb blaugrüner Leucht- sowie blauer und ultravioletter Laserdioden gezeigt (siehe z. B. [25] und darin befindliche Referenzen). Ihre Betriebsstundenzahl wird stetig gesteigert. Die fehlende Realisierung grüner LD ist eng verbunden mit diesen ungeklärten Fragen. Dabei sind sowohl technologische Probleme, wie die Suche nach geeigneten Substratmaterialien als auch das Verständnis der Lasingmechanismen in diesem Material von großer Bedeutung. Der wichtigste Parameter für Laseranwendungen ist in diesem Zusammenhang der optische Gewinn. Er soll nachfolgend ausführlicher untersucht werden, wobei besondere Bedeutung den Gewinnmessungen an der $[1\bar{1}00]$ -orientierten Struktur zugeordnet wird.

Für GaN(0001) wird in vielen Arbeiten die Rekombination eines Elektronen-Loch-Plasmas als Ursache der stimulierten Emission vermutet [105, 106, 107, 108]. Im Vergleich zu zinkblende Quantengraben aus GaAs erfordern konventionelle (hexagonale) GaN-basierte Heterostrukturen sehr hohe Ladungsträgerdichten, um optischen Gewinn zu erreichen [109, 110, 111, 112, 113]. Dies ist sowohl auf die großen effektiven Massen in Valenz- und Leitungsband zurückzuführen, als auch auf den Fakt, dass die Bänder für schweres (HH) und leichtes Loch (LH) am Γ Punkt sehr dicht beieinander liegen. Zusätzlich dazu ist in GaN(0001) kein sichtbarer Einfluss einer biaxialen Verspannung oder des Quanteneffekts auf die Bänder festzustellen, sodass HH-Band und LH-Band auch unter diesen Bedingungen nicht deutlich voneinander separiert werden [114, 115]¹⁴.

Wie bereits aus dem vorangegangenen Teil der Arbeit ersichtlich, hat die kristallografische Orientierung einen großen Einfluss auf die optischen Eigenschaften von Halbleitern und beeinflusst u. a. wesentlich ihre Bandstruktur. Es gibt bereits einige theoretische Untersuchungen zur Abhängigkeit des optischen Gewinns von der Kristallorientierung in hexagonalen GaN-basierten Quantengraben. So fand Domen *et al.* [117] rechnerisch für $[1\bar{1}00]$ -orientiertes GaN eine deutliche Separation von HH und LH (mit dem LH oberhalb des HH) und eine Reduktion der Transparenzladingsträgerdichte¹⁵, hervorgerufen durch eine anisotrope Verspannung in der c-Ebene. Yeo *et al.* [118] zeigt für GaN/AlGaIn(10 $\bar{1}0$) ebenfalls eine starke Separation der beiden oberen Subbänder und findet für den Vergleich von $[0001]$ - und $[10\bar{1}0]$ -Orientierung eine niedrigere Transparenzdichte für den zweiten Fall. Park [119] hat diesen Vergleich unter Berücksichtigung von Vielteilcheneffekten durchgeführt, welche bei GaN-basierten Quantengraben aufgrund der großen Exzitonenbindungsenergie signifikant sind. Wenn dabei die internen Felder im $[0001]$ -orientierten GaN/AlGaIn-Quantengraben mit in die Rechnungen einbezogen werden, ist der optische

¹⁴Eine biaxiale Verspannung in der Quantengrabenebene einer GaN/AlGaIn(0001)-LD reduziert zwar die Schwellstromdichte der Diode gegenüber einem unverspannten Graben, jedoch ist diese Verringerung im Vergleich mit konventionellen GaAs/AlGaAs-LDs sehr gering [116].

¹⁵Die Transparenzladingsträgerdichte ist die Dichte an induzierten Ladungsträgern, bei der der Übergang von Absorption zu Gewinn stattfindet, d. h. die Zahl der angeregten Ladungsträger gleich derer im Grundzustand ist.

Gewinn der $[10\bar{1}0]$ -orientierten Struktur deutlich größer als für eine c -orientierte Probe. Alle bisherigen Betrachtungen zu diesem Thema waren rein theoretisch. Im Folgenden werden Untersuchungen der stimulierten Emission an den bisher diskutierten Quantengrabenstrukturen vorgestellt und dabei die Ergebnisse der ersten experimentellen Untersuchungen zur stimulierten Emission einer $(1\bar{1}00)$ -gewachsenen GaN/AlGaIn-Quantengrabenstruktur präsentiert. Erstmals werden dabei experimentell ermittelte Gewinnspektren einer solchen Struktur gezeigt. Die Untersuchungen wurden mit der bekannten und in Abschnitt 3.2.3 ausführlich beschriebenen Methode zur variablen Strichlänge durchgeführt.

4.3.1 Untersuchungen der strichlängenabhängigen Kantenlumineszenz

Kantenlumineszenz- und Gewinnspektren der 3.1 nm InGaIn/GaN-Quantengrabenstruktur

Bei der strichlängenabhängigen Untersuchung der Kantenlumineszenz für die Probe mit den 5.9 nm breiten Quantengräben konnte nicht der für optischen Gewinn charakteristische superlineare Anstieg der gesamten PL-Intensität mit zunehmender Strichlänge (s. Abschnitt 3.2.3) festgestellt werden. Im Gegenteil, die Spektren deuteten auf eine sehr hohe Untergrundabsorption hin. Trotzdem beide InGaIn-Proben aufgrund ihres strukturellen Aufbaus nicht auf stimulierte Emission optimiert sind (siehe nachfolgende Abschnitte), ergab sich eine etwas bessere Situation für die Probe mit den schmaleren (3.1 nm)

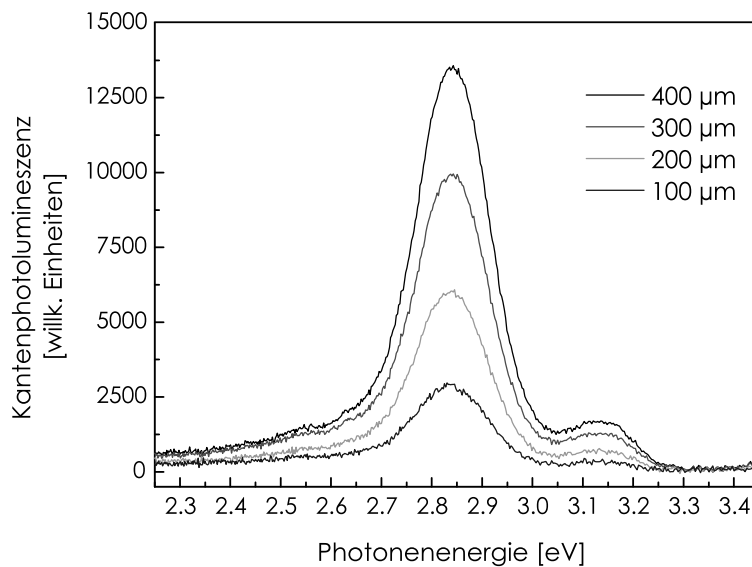


Abbildung 4.23: Kantenphotolumineszenzspektren der InGaIn/GaN-Quantengrabenstruktur mit 3.1 nm Grabendicke bei unterschiedlichen Längen des strichförmigen Anregungsfokuss unter quasistationärer Anregung mit einer Anregungsdichte von 1.8 MW/cm^2 ($T = 5 \text{ K}$).

Quantengraben. Abbildung 4.23 zeigt die Kantenlumineszenzspektren der InGaN/GaN-Quantengrabenstruktur mit 3.1 nm Grabendicke bei unterschiedlichen Strichlängen des Anregungsfokuss und einer Anregungsdichte von 1.8 MW/cm^2 . Dies würde einer optisch generierten Ladungsträgerdichte pro Quantengraben von $1.6 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ entsprechen (s. Abschnitt 4.2.2). Da die Impulslänge des Anregungslasers mit $\tau_L = 15 \text{ ns}$ um den Faktor zehn größer als die Lebensdauer der Ladungsträger in der Probe war, sind die Anregungsbedingungen als quasistationär anzusehen. Die Lumineszenzintensität nimmt im Bereich der Hauptbande deutlich mit der Länge des Fokuss zu, jedoch ist ein superlinearer Anstieg der Lumineszenzintensität mit steigender Strichlänge, als Anzeichen von optischem Gewinn, nur schwer zu erkennen. Dass trotzdem ein geringer optischer Gewinn in der Probe vorhanden ist, wird erst aus den nach Gleichung 3.1 errechneten Gewinnspektren ersichtlich.

In Abb. 4.24 ist das resultierende Spektrum dargestellt. Da sich für alle Strichlängenkombinationen der gleiche Verlauf ergibt, also z. B. keine Sättigungsmechanismen bei größeren Längen auftreten, ist hier nur ein Gewinnspektrum abgebildet. Die Ergebnisse zeigen einen sehr geringen optischen Gewinn von ca. 10 cm^{-1} , der sich aber noch eindeutig von Rauschen abgrenzt. Eine starke Untergrundabsorption deutet sich an.

Betrachtet man die Kantenlumineszenzspektren in Abb. 4.23, so fällt noch ein weiteres Phänomen auf. Im niederenergetischen Ausläufer der PL-Bande wird bei größeren Längen eine zusätzliche, spektral eher breite Lumineszenzstruktur sichtbar. Die möglichen Gründe dafür und die Ursache für die starke Untergrundabsorption werden nachfolgend noch diskutiert.

Abschließend soll noch eine besondere Beobachtung erwähnt werden. Obwohl bei der Me-

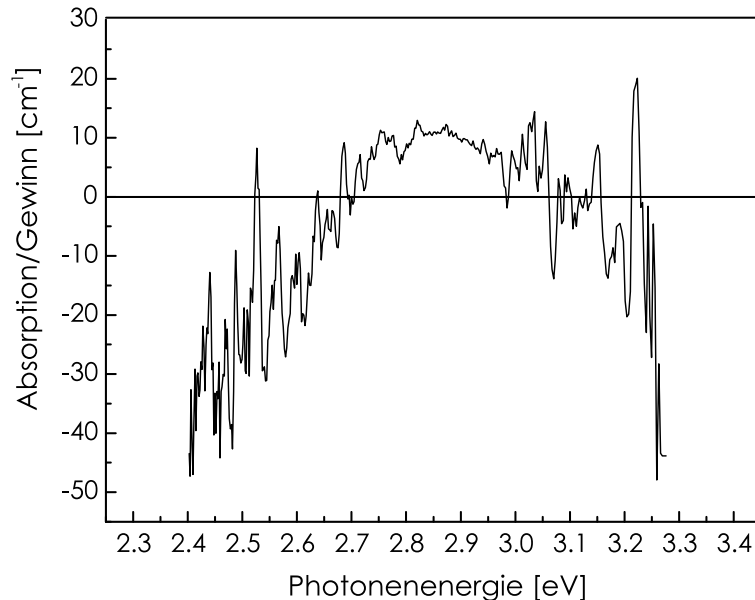


Abbildung 4.24: Gewinnspektrum der InGaN/GaN-Quantengrabenstruktur mit 3.1 nm Grabendicke, das sich aus den Kantenlumineszenzspektren aus Abb. 4.23 ergibt.

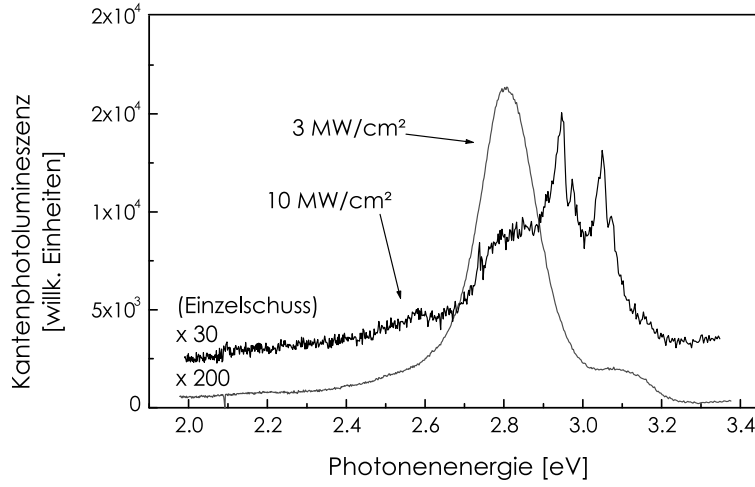


Abbildung 4.25: Kurzzeitig im Kantenphotolumineszenzspektrum ($T = 77$ K) beobachtetes Lasing der InGaN/GaN-Quantengrabenstruktur mit 3.1 nm Grabenbreite bei strichförmigen Anregungsfokuss. Bei 10 MW/cm^2 ($n_{eh} = 7 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$) tritt neben Lasing auch eine sofortige, irreparable Beschädigung der Probenoberfläche auf; die Quantengrabenstruktur platzt ab.

thode der Strichlängenvariation kein Lasing auftreten sollte, sind in einem Experiment zur Untersuchung der Kantenlumineszenz in Abhängigkeit von der Anregungsdichte bei der sehr hohen Dichte von ca. 10 MW/cm^2 ($n_{eh} = 7 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ pro Quantengraben) kurzzeitig zwei schmalbandige Peaks im Spektrum der Probe gemessen worden, deren Folge aber ein sofortiges vollständiges Verlöschen der Lumineszenz aus diesem Probenbereich war. Für diese Messungen wurde die Probe bei $T = 77$ K strichförmig mit einem einzelnen 15 ns langen Anregungsimpuls (343 nm) angeregt. Abbildung 4.25 zeigt ein solches Spektrum zusammen mit einem über 200 Laserimpulse integrierten Spektrum bei 3 MW/cm^2 als Vergleich. Zwei Einzelpeaks im hochenergetischen Ausläufer der Hauptbande bei 2.95 eV und 3.05 eV sind zu sehen.

Zeitgleich mit diesen beiden Peaks musste eine Beschädigung der Probenoberfläche in Form des streifenförmigen Anregungsfokuss festgestellt werden, die sich im Lichtmikroskop als metallische Streifen und Tröpfchen herausstellte. Neben diesen sind bei Aufnahmen mit dem AFM [87] einige Streifen unter der Oberfläche liegend, andere als Rillen oder Risse (Tiefe bis zu 50 nm, Längen und Breiten in der Größe der Fokussabmaße) in der Probenoberfläche identifiziert worden. Alle diese Objekte befanden sich stets im Bereich des streifenförmigen Anregungsfokuss.

Von dieser Art Beschädigung ist für InGaN-Mehrfachquantengräben in der Literatur bereits berichtet worden. Cohen *et al.* [120] konnte solche Defekte als indium- und galliumhaltige Bereiche identifizieren, die durch Entmischung entstanden sind. Sie bildeten sich unterhalb der Oberfläche und durchstachen diese während ihrer Entwicklung. Die für eine Entmischung benötigte thermische Energie lieferten nichtstrahlende Rekombinationen an Kristalldefekten im InGaN, die durch Reabsorption von stimuliertem Licht des Quantengrabens angeregt wurden. In unserem Experiment trat dieser Effekt reproduzierbar in

einem Bereich der Anregungsdichte zwischen 5 und 10 MW/cm² an der Probe mit den 3.1 nm breiten Quantengraben auf.

Die Beobachtungen von Cohen *et al.* sind konsistent mit denen, die an der 3.1 nm Probe gemacht wurden. Vor allem der Fakt, dass die beiden Lasingpeaks in Abb. 4.25 am hochenergetischen Ausläufer der PL-Bande liegen, erhöht die Wahrscheinlichkeit von Reabsorptionseffekten. Eine Verbindung mit der Defektrekombination in den InGa_N-Quantengraben ist eher auszuschließen, da in jenem Fall die Entmischungserscheinungen eindeutig auf nichtstrahlende Rekombination im InGa_N hinweisen.

Kantenlumineszenzspektren der [0001]-orientierten GaN/AlGa_N-Quantengrabenstruktur

Während bei der InGa_N-Struktur mit 3.1 nm Grabenbreite noch ein geringfügiger Gewinn zu verzeichnen ist, deuten die Kantenlumineszenzspektren der GaN/AlGa_N(0001)-Probe auf eine alles dominierende Untergrundabsorption hin. Abbildung 4.26 zeigt diese Spektren der C-Probe unter Anregung mit unterschiedlicher Strichlänge und einer vergleichsweise hohen Anregungsdichte von 110 MW/cm². Deutlich ist zu sehen, dass bei der Variation der Strichlänge (im Experiment bei $l \geq 125 \mu\text{m}$, Strichbreite $b = 50 \mu\text{m}$), im Rahmen der Messgenauigkeit, keine Veränderungen im Spektrum auftreten, weder in der PL-Intensität noch spektral.

Sowohl dieses Ergebnis als auch das Verhalten der InGa_N-Proben sind direkt auf den strukturellen Aufbau dieser Proben zurückzuführen. Wie in Abschnitt 4.4 gezeigt wird, besteht aufgrund des großen Brechungsindex von SiC, größer als der von Quantengra-

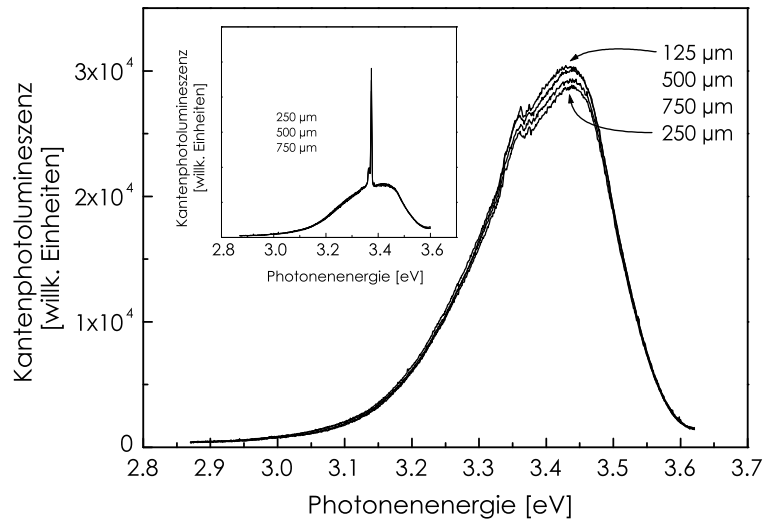


Abbildung 4.26: Kantenphotolumineszenzspektren der GaN/AlGa_N(0001)-Quantengrabenstruktur bei unterschiedlichen Längen des strichförmigen Anregungsfokuss und einer Anregungsdichte von 110 MW/cm² ($T = 5 \text{ K}$). Der Inset zeigt Lasingeffekte, welche an einzelnen Probenpositionen auftraten und auf Mikrorisse zurückzuführen sind.

benpaket und Pufferschicht, und dem nur minimalen Indexsprung zwischen Gräben und Barrieren, praktisch keine Führung der sich ausbreitenden Mode mit der aktiven Schicht. Vergleicht man die PL-Spektren der InGaN/GaN- und der GaN/AlGaN(0001)-Strukturen, so kann man die Proben in zwei Gruppen einteilen. Während die Emissionsenergie der InGaN-Proben im Bereich der indirekten Bandlücke liegt, und das Substrat dementsprechend einen sehr kleinen Absorptionskoeffizienten besitzt, absorbiert das SiC im Spektralbereich der GaN/AlGaN-Lumineszenz sehr stark ($E_{g,dir} = 3.02$ eV, $E_{g,indir} = 2.81$ eV)¹⁶. Hier liegt die Quantengrabenlumineszenz energetisch oberhalb der direkten Bandlücke vom SiC. (Das Absorptionsspektrum ist auch durch eigene Transmissionsmessungen an Proben des Substratmaterials bestätigt worden.) Diese Situation führt zu dem, dass die Lumineszenzintensität der GaN/AlGaN-Struktur trotz steigender Anregungsfläche nicht zunimmt. Zum anderen kann die mit größeren Strichlängen zunehmende PL-Intensität im niederenergetischen Ausläufer der Kantenlumineszenz der 3.1 nm InGaN-Probe (Abb. 4.23) auch auf eine strahlende Rekombination an Störstellen des SiC hinweisen, welche durch die Reabsorption des durch stimulierte Emission in der aktiven Schicht entstandenen Lichtes angeregt wird.

Experimentell beobachtetes Lasing Trotz der vermutlichen Absorption im SiC und der Unabhängigkeit der PL von der Strichlänge ist bei der c-orientierten GaN/AlGaN-Quantengrabenstruktur an einzelnen Positionen an der Probenkante Lasing festgestellt worden. Das ist im Ansatz bereits in der Abb. 4.26 zu erkennen und wird im Inset für einen ausgeprägteren Fall gezeigt. Die beobachteten Linien sind unabhängig von der verwendeten Strichlänge (Die Spektren für unterschiedliche Strichlängen liegen im Inset direkt übereinander.) und ihre Intensität steigt superlinear mit der Anregungsintensität. Die energetische Lage der Lasingpeaks variierte zwischen den einzelnen Positionen an der Probenkante. Als Ursache für das Lasing können Mikrorisse angenommen werden, die ausgehend von der Grenzfläche Substrat–Pufferschicht durch das aktive Schichtpaket bis zur Oberfläche reichen. Durch sie werden Mikroresonatoren gebildet, in denen die Verstärkung größer als die Verluste durch die Substratabsorption ist. Liegen diese Bereiche in der Nähe der Probenkante, kann Lasing beobachtet werden. Die Mikrorisse sind in TEM-Messungen an dieser Probe deutlich zu sehen [121]. Solche „Cracks“ sind für das Wachstum von AlGaN auf GaN auf unterschiedlichen Substraten (Saphir, SiC, Si) vielfach beobachtet worden (siehe z. B. [122] und darin befindliche Referenzen), und es gibt eine Reihe von Ansätzen diese zu vermeiden. Allerdings sind auch hier die Mehrheit aller Fragen noch unbeantwortet. Als Ursachen werden sowohl thermisch induzierte (aufgrund der unterschiedlichen thermischen Ausdehnungskoeffizienten der Materialien) als auch wachstumsbedingte Verspannungen (durch die Gitterfehlانpassung) diskutiert.

Im Gegensatz zu den Materialveränderungen, die während des kurzzeitigen Lasings der InGaN-Probe beobachtet wurden, sind hier keine Beschädigungen der Probe aufgetreten. Wegen der Unterschiede der beiden Proben bezüglich Substratabsorption und Wellenleitungseigenschaften ist ein Vergleich der Schwelldichten der beiden, d. h. der Anregungs-

¹⁶Die Angaben entstammen [36] und gelten für $T = 300$ K.

bzw. Ladungsträgerdichten, ab denen jeweils Lasing beobachtet werden konnte, nur wenig aussagekräftig. Für die InGaN-Probe liegt sie im Bereich von 5 bis 10 MW/cm² und somit mehr als eine Größenordnung unterhalb derer für die GaN/AlGaN-Struktur (110 MW/cm²).

Stimulierte Emission und Gewinnspektren einer $[1\bar{1}00]$ -orientierten GaN/AlGaN-Quantengrabenstruktur

Die bis hierhin diskutierte stimulierte Emission von $[0001]$ -orientierten hexagonalen Nitridheterostrukturen findet sich in der Literatur vielfach wieder, sowohl theoretisch diskutiert, als auch experimentell untersucht. Wie sich gezeigt hat, ist das Verhalten der im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Proben sehr stark durch das Substrat beeinflusst, unabhängig davon, ob es sich um InGaN/GaN- oder um GaN/AlGaN-Mehrfachquantengraben handelt. Da die $[1\bar{1}00]$ -orientierte Probe auf dem optisch transparenten γ -LiAlO₂ gewachsen ist, sollte das Substrat hier keinen entscheidenden Einfluss auf die PL-Spektren haben und die experimentellen Ergebnisse in erster Linie von den orientierungsabhängigen Eigenschaften der $(1\bar{1}00)$ -Quantengraben bestimmt werden.

Experimentelle Ergebnisse Die Messungen der strichlängenabhängigen Photolumineszenz zeigen dementsprechend auch für die $(1\bar{1}00)$ -Heterostruktur eine völlig andere Situation, als für die Proben auf SiC. In Abb. 4.27 sind die Kantenlumineszenzspektren dieser Probe dargestellt. Deutlich ist hier der superlineare Anstieg der PL-Intensität mit zunehmender Strichlänge zu sehen. Die Verschiebung des Maximums der Kantenlumineszenz gegenüber der Lumineszenz von der Oberfläche (ca. 65 meV) entsteht durch die Reab-

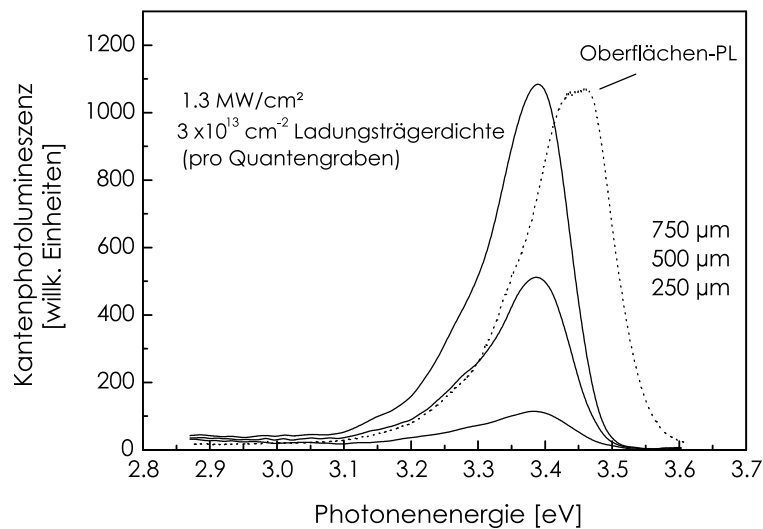


Abbildung 4.27: Kantenphotolumineszenzspektren der $[1\bar{1}00]$ -orientierten GaN/AlGaN-Quantengrabenstruktur bei $T = 5$ K. Die Spektren sind bezogen auf die Oberflächenlumineszenz (gepunktete Kurve) ca. 65 meV rotverschoben.

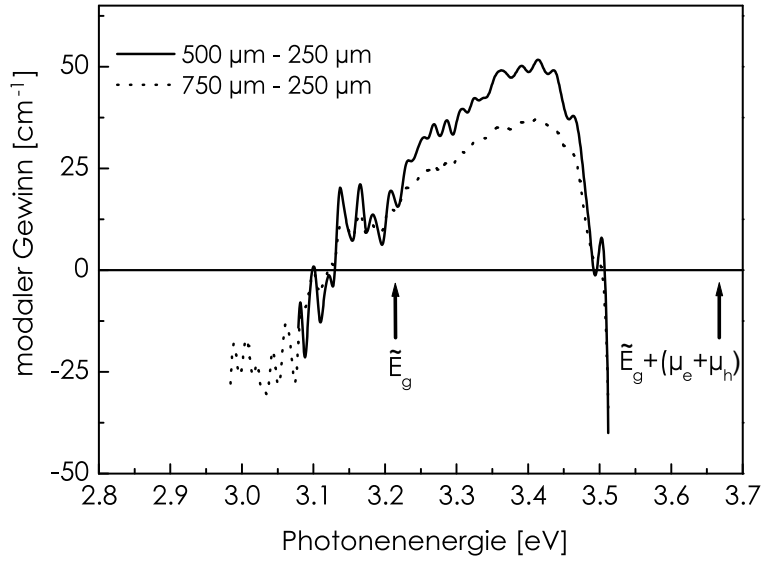


Abbildung 4.28: Gewinnspektren der $[1\bar{1}00]$ -orientierten GaN/AlGaIn-Heterostruktur für verschiedene Strichlängenkombinationen ($T = 5$ K). Für größere Strichlängen tritt Gewinnsättigung auf. Die starke Pufferabsorption ist oberhalb 3.5 eV zu sehen. Die Pfeile markieren den Bereich, in dem rechnerisch Gewinn erwartet wird.

sorption des hochenergetischen Teils der stimulierten Emission im GaN-Puffer.

Die sich aus Gleichung 3.1 ergebenden Gewinnspektren für zwei unterschiedliche Strichlängenkombinationen sind in Abb. 4.28 dargestellt. Die Messungen zeigen einen maximalen Nettogewinn von ca. 50 cm^{-1} , wobei für Strichlängen über $500 \mu\text{m}$ Gewinnsättigung auftritt (s. gepunktete Kurve). Für Photonenenergien unterhalb 3.1 eV deuten die Spektren auf eine Untergrundabsorption der GaN-Pufferschicht hin. Für Energien oberhalb 3.5 eV ist der steile Übergang von Gewinn zu Absorption zu sehen.

Diese Ergebnisse bieten nun erstmalig die Möglichkeit, die Gewinneigenschaften von Nitridheterostrukturen bei Berücksichtigung der kristallografischen Orientierung auf der Grundlage experimenteller Befunde zu studieren. Eine simulationsgestützte Diskussion dazu erfolgt im Abschnitt 4.4.

Gewinnmechanismus, Bandlückenrenormalisierung und Bandfüllung Für die in den Experimenten verwendete Anregungsdichte von 1.3 MW/cm^2 und die aus den Abklingmessungen gewonnenen Lebensdauer (Abschnitt 4.1.4) wurde die zweidimensionale Ladungsträgerdichte pro Quantengraben in der $(1\bar{1}00)$ -Probe abgeschätzt¹⁷. Sie liegt mit $3 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ pro Graben, entsprechend Abschnitt 2.2.1, deutlich über der Motttdichte. Somit sind auch hier keine Exzitonen an der stimulierten Emission beteiligt, sondern ein Elektron-Loch-Plasma. Es kommt zur Reduzierung der Bandlücke. Wie bereits erwähnt, ist die Transparenzladungsträgerdichte in Nitrid-Lasern sehr hoch. Sie liegt im Bereich

¹⁷Entsprechend der Diskussion in Abschnitt 4.2.2 wird dabei davon ausgegangen, dass bei diesen Anregungsdichten noch keine Konkurrenzprozesse zur detektierten PL auftreten.

von 10^{19} cm^{-3} [123, 124]. Die damit verbundene Verringerung der Bandlücke wird für [0001]-orientierte Nitridbauelemente experimentell mit 200-225 meV angegeben [125].

In Bezug auf die Gewinnspektren heisst das, dass negative α -Werte zu erwarten sind, energetisch ausgehend von der renormalisierten Bandlücke \tilde{E}_g bis hin zu dem Energiewert der sich aus der Summe von \tilde{E}_g und dem Füllen der Bänder (der Summe der chemischen Potentiale der Elektronen μ_e und Löcher μ_h - s. Abb. 2.3) ergibt [126].

Nach Gleichung 2.20 erhält man für den idealen 2D-Fall mit $a_{Bx} = 3 \text{ nm}$ und $E_x^b = 28 \text{ meV}$ [36] ein $\Delta E_g = 305 \text{ meV}$. Dies ist ca. 30% höher, als die oben genannten Literaturwerte. Die chemischen Potentiale sind wieder für $T = 0 \text{ K}$ unter der Verwendung der Ladungsträgermassen aus Tabelle 4.1 errechnet worden und betragen $\mu_e = 380 \text{ meV}$ und $\mu_h = 70 \text{ meV}$. Dabei ist die Angabe von μ_h als obere Grenze zu sehen, da vereinfacht davon ausgegangen wurde, dass nur das A-Band gefüllt ist. Der so ermittelte Bereich, in dem Gewinn erwartet wird, ist durch die Pfeile in Abb. 4.28 markiert. Die Übereinstimmung mit den experimentell ermittelten Spektren ist gut, wenn man berücksichtigt, dass bei dieser Betrachtung weder ein mögliches inhomogenes Füllen der einzelnen Quantengraben (durch das Absorptionsprofil des Lasers im aktiven Schichtpaket) noch die endliche Grabendicke oder die oberhalb 3.5 eV auftretende Absorption in der Pufferschicht berücksichtigt worden sind.

Vergleicht man das chemische Potenzial der Löcher, wie es für die hier verwendete Anregungsdichte vorliegt, mit der für unverspanntes Volumen-GaN bekannten Aufspaltung des dreifach entarteten Valenzbandes¹⁸ ergibt sich, dass bei der hier vorliegenden Ladungsträgerdichte alle drei Subbänder gefüllt werden. Eine Teilnahme aller drei Subbänder an der Rekombination ist daher anzunehmen.

Die Ergebnisse bestätigen grundsätzlich, dass die Rekombination eines Elektron-Loch-Plasmas der Mechanismus für die stimulierte Emission in der hier untersuchten GaN/AlGaIn(1 $\bar{1}$ 00)-Quantengrabenstruktur ist. Sie sind damit in Einklang mit einem Großteil der in der Literatur diskutierten Befunde für [0001]-orientierte Nitridstrukturen. Die hier gezeigten optischen Untersuchungen deuten darauf hin, dass (1 $\bar{1}$ 00)-Heterostrukturen mit ihrer Orientierung senkrecht zur [0001]-Achse hervorragende Möglichkeiten für die Realisierung von Laserdioden auf GaN-Basis bieten.

Leider konnten die Aussagen von Park [119] über einen im Vergleich besseren optischen Gewinn von m-orientierten Proben experimentell nicht vollständig bestätigt werden, da die unterschiedlichen Vorraussetzungen für die Wellenausbreitung in den hier verwendeten Proben einen direkten Vergleich der Gewinneigenschaften von [0001]- und [1 $\bar{1}$ 00]-orientierten GaN/AlGaIn-Quantengrabenstrukturen nicht zulassen.

Es ist empfehlenswert, weitere Untersuchungen an, für einen direkten Vergleich der Orientierungsabhängigkeit, optimierten Proben durchzuführen. Eine Möglichkeit der Optimierung wird zum Abschluss des folgenden Abschnittes gezeigt.

¹⁸ $\Delta AB = 6 \text{ meV}$, $\Delta BC = 21 \text{ meV}$ bei $T = 2 \text{ K}$ [98].

4.4 Wellenführung und Analyse der modalen Gewinnspektren

Die in der Arbeit untersuchten Proben sind in ihrer Struktur zwar nur vereinfacht den kommerziellen Laserstrukturen ähnlich, es lassen sich aber auch an ihnen bereits erste Aussagen über charakteristische Größen, wie den Materialgewinn, ableiten. Speziell für die $[1\bar{1}00]$ -orientierte Quantengrabenstruktur ist dies von besonderer Bedeutung, da bisher experimentelle Daten hierfür nicht zur Verfügung standen.

Um grundsätzlich die erhaltenen Ergebnisse zur stimulierten Emission und die Situation der Wellenführung in allen untersuchten Proben besser zu verstehen, wurden Simulationen der Wellenleitung in diesen Strukturen mit einem Programm zur quasi-2dimensionalen Simulation von Halbleiterlasern [86] durchgeführt. Das Programm löst dafür die 2D-Wellenleitergleichungen in einer effektiven Brechungsindex-Näherung, wobei ein ladungsträger- und wellenlängenabhängiges Modell für die komplexe dielektrische Funktion benutzt wird. Die für diese Rechnungen verwendeten Parameter sind in Tabelle 4.2 aufgeführt. Es erwies sich als schwierig, eine sichere Angabe für die Absorption der beiden Substrate zu finden. Deshalb wurde entsprechend der spektralen Lage der jeweiligen PL-Bande bezüglich der direkten/indirekten Bandlücke von SiC eine schwache bzw. eine starke Absorption angenommen. Da LiAlO_2 im untersuchten Spektralbereich transparent ist, wurde in diesem Fall ebenfalls eine sehr geringe Absorption angenommen.

Bereits in Abschnitt 4.3 hatte sich angedeutet, dass der strukturelle Aufbau der Proben auf SiC keine positiven Bedingungen für stimulierte Emission in den Quantengraben ermöglicht. Zwar konnte an der 3.1 nm InGa N /Ga N -Probe ein geringer Gewinn gemessen werden, es wurde jedoch bei allen diesen Strukturen eine sehr starke Untergrundabsorption festgestellt.

Bei der Simulation der Wellenführung stellte sich heraus, dass das verwendete Modell für die Proben auf SiC nicht geeignet ist. Aufgrund des deutlich höheren Brechungsindex des SiC gegenüber der Ga N -Pufferschicht und dem aktiven Schichtpaket werden die Moden fast vollständig im Substrat geführt. Der Anteil der einzelnen Moden, der in

	10x InGa N /Ga N	15x Ga N /AlGa N (0001)	15x Ga N /AlGa N ($1\bar{1}00$)
λ	445 nm	365 nm	358 nm
$n(\text{aktive Schicht})$	2.52*	2.65*	2.67*
$n(\text{Barriere})$	2.45*	2.55*	2.57*
$n(\text{Ga\text{N}-Pufferschicht})$	2.45*	2.65*	2.67*
$n(\text{SiC/LiAlO}_2)$	2.72 [†]	2.80 [†]	1.60 [‡]
$\alpha(\text{aktive Schicht}) [\text{cm}^{-1}]$	-10^2 bis -10^5	-10^4 bis -10^5	
$\alpha(\text{Barriere}) [\text{cm}^{-1}]$	100*	1000*	
$\alpha(\text{Pufferschicht}) [\text{cm}^{-1}]$	100*	1000*	
$\alpha(\text{Substrat}) [\text{cm}^{-1}]$	100	10^5	100

Tabelle 4.2: Parameter für die Wellenleitersimulation der (Al,In,Ga) N -Heterostrukturen. Es sind n der Brechungsindex und α die Absorption nach * [92],[†] [36] und [‡] [93] bzw. eigene Parametervariation ($T = 300$ K).

der aktiven Schicht liegt, ist so klein, dass die Simulation keine realistischen Ergebnisse ergibt, auch dann nicht, wenn die Absorption des Substrates künstlich verringert wird. Dieses Ergebnis verdeutlicht noch einmal den Eindruck, dass aufgrund ihres Aufbaus, in diesen Proben ganz und gar kein optischer Gewinn erwartet werden kann.

Unter diesem Gesichtspunkt ist es also verwunderlich, dass an der 3.1 nm InGa_N/Ga_N-Probe trotzdem ein geringer Gewinn gemessen wurde. Ursache dafür könnte sein, dass die Initialschicht, der Bereich des Ga_N, der direkt auf dem SiC abgeschieden wird, einen Einfluss auf die Wellenführung hat. Diese Schicht ist sehr reich an Versetzungen, welche sich mit zunehmender Schichtdicke auflösen. Möglicherweise besitzt dieser Bereich direkt an der Grenzfläche Substrat/Pufferschicht dadurch einen etwas kleineren Brechungsindex und koppelt so geringfügig das Substrat optisch ab. Das würde sofort zu einem höheren Anteil der Moden in dem aktiven Schichtpaket führen und die Bedingungen für den optischen Gewinn erhöhen.

In der neuartigen M-Probe ist die Situation eine völlig andere. Zum einen sollten die Bedingungen für die sich ausbreitenden Moden, durch den sehr kleinen Brechungsindex des Substrates, prinzipiell besser sein. Zum anderen soll die veränderte Kristallorientierung zu anderen Gewineigenschaften führen und beispielsweise einen höheren optischen Gewinn mit sich bringen (s. Abschnitt 4.3). Park [119] und andere haben theoretisch gezeigt, dass in $[1\bar{1}00]$ -orientierten Quantengraben der optische Gewinn grundsätzlich wesentlich größer als bei $[0001]$ -orientierten Gräben sein sollte.

Aus der Simulation folgt, dass auch bei dieser Probe noch keine idealen Bedingungen für eine optimale Führung der Moden in der aktiven Region vorhanden sind. In Abb. 4.29 ist gut zu erkennen, dass die sich verstärkende Mode annähernd vollständig im Ga_N-Puffer

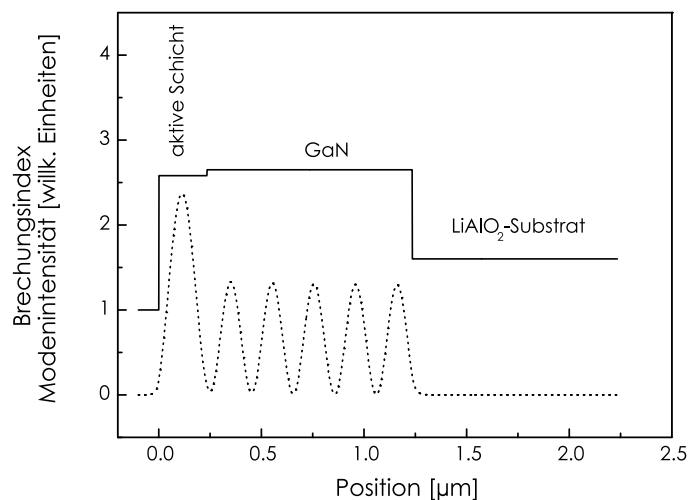


Abbildung 4.29: Brechungsindexverlauf (Realteil) und Mode mit dem größten Konfinement in der aktiven Schicht der $[1\bar{1}00]$ -orientierten Ga_N/AlGa_N-Heterostruktur auf γ -LiAlO₂(100) aus einer quasi-2dimensionalen Simulation der Wellenleiterstruktur. Für das aktive Schichtpaket wird der mittlere Brechungsindex aus den Indizes der Gräben und Barrieren dargestellt.

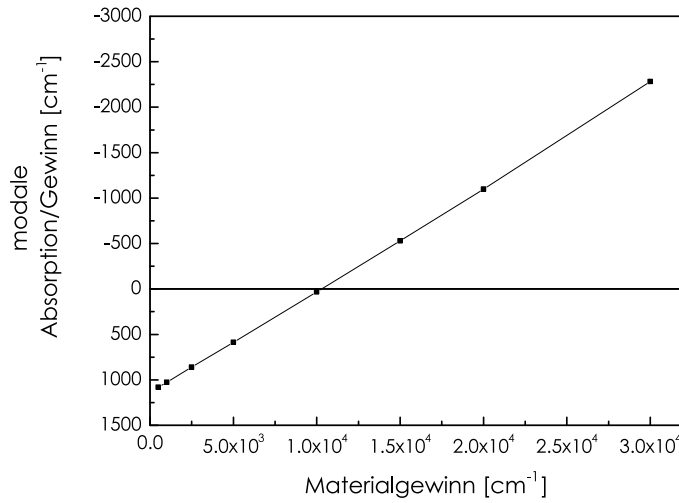


Abbildung 4.30: Optischer Gewinn als Funktion des Materialgewinns der $[1\bar{1}00]$ -orientierten GaN/AlGaIn-Heterostruktur auf γ -LiAlO₂(100) aus einer quasi-2dimensionalen Simulation der Wellenleiterstruktur.

und der aktiven Region geführt wird und ihre Intensität im Substrat gegen Null geht. Dadurch ist die Wellenführung in dieser Probe zwar bereits wesentlich besser als bei den Strukturen auf SiC, jedoch ist die Überlagerung der sich ausbreitenden Moden mit den Quantengraben im aktiven Schichtpaket immer noch relativ gering. Der die Überlappung beschreibende Konfinementfaktor Γ beträgt ca. 3.3%. Die Ursache hierfür ist der nur minimale Brechungsindexunterschied zwischen dem aktiven Schichtpaket (gemittelt) und dem GaN-Puffer, der zusätzlich dazu auch noch den größeren der beiden Brechungsindizes besitzt.

Im Rahmen der Simulation ist auch der zu erwartende modale optische Gewinn, als ausschlaggebende Größe für die stimulierte Emission, in Abhängigkeit von den Materialparametern bestimmt worden. Die materialabhängige Eigenschaft des optischen Gewinns wird durch den Materialgewinn beschrieben, der von den charakteristischen Eigenschaften des Halbleiters, wie z. B. der Valenzbandaufspaltung, der Verteilung und den Fermienergien der Elektronen und Löcher sowie dem Brechungsindex abhängt (s. Abschnitt 2.3).

In Abb. 4.30 ist der optische Gewinn als Funktion des Materialgewinns dargestellt. In Verbindung mit den experimentell ermittelten Gewinnspektren für die $[1\bar{1}00]$ -orientierte Probe und dem maximalen optischen Gewinn von $g = 50 \text{ cm}^{-1}$ ergibt sich, dass die untersuchte 15fach GaN/AlGaIn-Quantengrabenstruktur einen Materialgewinn von $1.1 \times 10^4 \text{ cm}^{-1}$ besitzt. Dies ist die erste Angabe des Materialgewinns von GaN($1\bar{1}00$) auf Basis von experimentellen Untersuchungen.

Park [119] diskutierte einen 2 nm GaN($1\bar{1}00$)-Quantengraben zwischen 7 nm Al_{0.2}Ga_{0.8}N-Barrieren mittels vielteilchentheoretischen Betrachtungen und gibt einen Gewinn von $1.4 \times 10^4 \text{ cm}^{-1}$ für eine Ladungsträgerdichte von $2 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ an. Dieser Wert ist etwas größer, als der entsprechend für identisch aufgebaute (0001)-Strukturen ermittelte Gewinn ($1.25 \times 10^4 \text{ cm}^{-1}$). Der in dieser hier vorliegenden Arbeit unter Zuhilfenahme der

experimentellen Daten gewonnene Materialgewinn stimmt ausgezeichnet mit der Rechnung von Park für die $[1\bar{1}00]$ -Probe überein. Die geringfügige Abweichung der Werte kann beispielsweise darauf zurückzuführen sein, dass die Rechnungen für einen Einfachquantengraben durchgeführt wurden, es sich bei der untersuchten Probe aber um einen 15fach Quantengraben mit etwas abweichenden Parametern für Gräben und Barrieren handelte. Leider ist der direkte Vergleich mit der $[0001]$ -orientierten GaN/AlGaIn-Probe, in Anbetracht der nicht zu vergleichenden Wellenführung in den beiden Proben, nicht möglich. Um an dieser Stelle allein die Abhängigkeit der Gewinneigenschaften von der Orientierung ermitteln, ist eine substratunabhängige Diskussion notwendig. Dafür müsste man den Einfluss des Substrates auf die Wellenleitung in beiden Probentypen auf das selbe minimale Niveau reduzieren. Erreichen lässt sich dies durch ein gezieltes Verändern des Brechungsindexes in dem Schichtpaket.

Verbesserung der Wellenleiterstruktur Für $(\text{In},\text{Al},\text{Ga})\text{N}$ -Schichtsysteme auf SiC ist die optische Abkopplung des Substrates durch das Einbringen einer AlGaIn-Pufferschicht zwischen Substrat und GaN-Puffer vielerorts bereits Standard. Außerdem ist bekannt, dass symmetrische Schichtstrukturen mit gleichen Bedingungen ober- und unterhalb der aktiven Region die Wellenführung im aktiven Schichtpaket wesentlich verbessern. Die entsprechenden Simulationsrechnungen für die $[1\bar{1}00]$ -orientierte 15fach GaN/AlGaIn-Heterostruktur zeigen, dass dieser zweite Punkt die Führung der geführten Moden in der Probe deutlich optimiert. Realisiert werden kann dies beispielsweise, in dem man die jeweils äußersten Barrieren des aktiven Schichtpaketes (unter Beibehaltung des Al-Gehaltes) in ihrer Dicke erhöht. Bei einer unteren Barrierendicke von 200 nm und ab einer Deck-

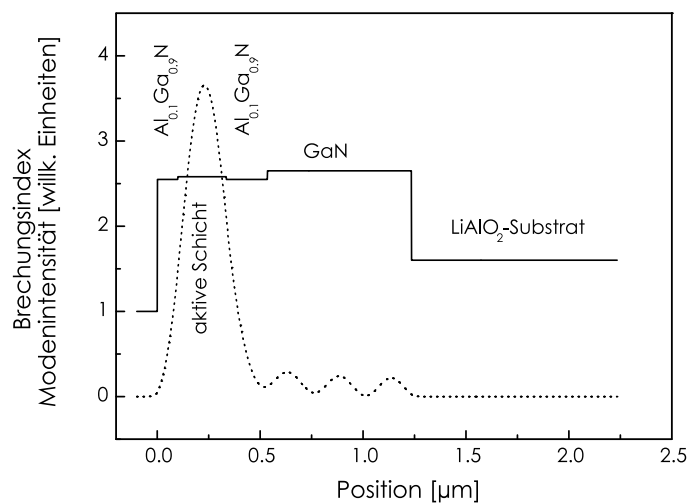


Abbildung 4.31: Brechungsindexverlauf (Realteil) und Mode mit dem größten Konfinement in der aktiven Schicht einer $[1\bar{1}00]$ -orientierten GaN/AlGaIn-Heterostruktur auf γ -LiAlO₂(100) mit verbesserter Wellenführung aus einer quasi-2dimensionalen Simulation der Wellenleiterstruktur. Für die aktive Schicht wird der mittlere Brechungsindex dargestellt.

schicht von $50\text{ }\mu\text{m}$ sind sowohl die GaN-Pufferschicht annähernd vollständig abgetrennt, als auch sehr hohe Werte für den optischen Gewinn zu erreichen. Der Konfinementfaktor Γ beträgt nun 7.6% und ist somit gegenüber der nicht optimierten Probe mit dem aktiven Schichtpaket an der Probenoberfläche mehr als doppelt so groß. Abbildung 4.31 zeigt eine nach diesen Parametern optimierte Probe. Deutlich ist der Unterschied zu Abb. 4.29 zu sehen.

Für die Anpassung der Wellenführung der [0001]-orientierten GaN/AlGa_{0.9}N-Probe an die wesentlich bessere Situation der [1 $\bar{1}$ 00]-orientierten Struktur ist die optische Abkopplung des Substrates der wichtigste Punkt. Die Simulation hat hier gezeigt, dass bereits ab einer Dicke von 100 bis 150 μm einer zusätzlichen AlGa_{0.5}N-Schicht mit angenommenen 50% Al-Gehalt das SiC optisch abgekoppelt ist. Bei einer zusätzlich angenommenen Verbesserung der Wellenleitung mit verbreiterten äußeren Barrieren, wie sie für die M-Probe beschrieben wurde, ergibt sich eine nahezu identische Wellenführung im Bereich der aktiven Region. Dies ist in Abb. 4.32 dargestellt. Deutlich ist hier die sehr gute Überlagerung der sich ausbreitenden Welle mit dem aktiven Schichtpaket zu sehen ($\Gamma = 7.3\%$). Es findet keine wesentliche Absorption des Lichtes mehr in der Pufferschicht oder dem Substrat statt. Bei dieser Diskussion ist jedoch kritisch zu beachten, dass die technische Realisierung solcher wellengeführten Strukturen natürlich seine Grenzen hat. Für Schichten mit einem hohen Al-Gehalt ist ab einer kritischen Dicke die Verspannung so hoch, dass es zu Rissen kommen kann (z. B. [127]). Als Alternative bieten sich dann Übergitter aus einer Folge von dünnen GaN-AlGa_{0.5}N-Schichten mit einem entsprechenden mittleren Brechungsindex und einer passenden Dicke an. Die gezeigte Optimierungsmöglichkeit für die Wellenführung in

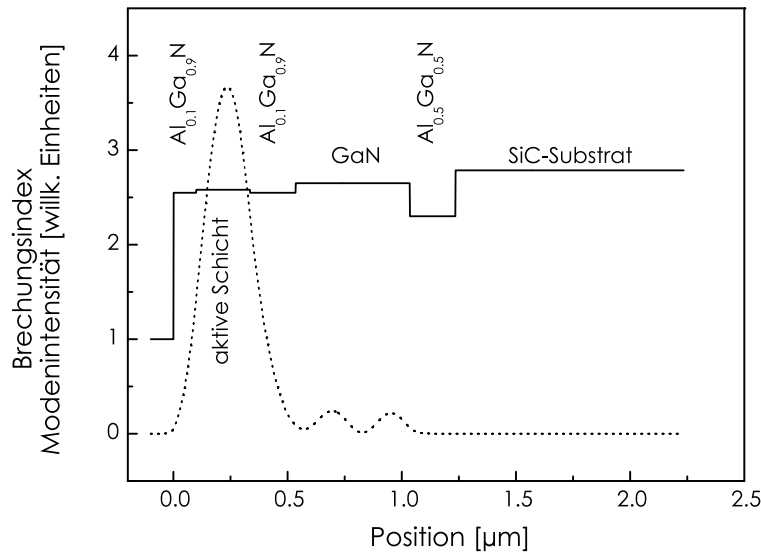


Abbildung 4.32: Brechungsindexverlauf (Realteil) und Mode mit dem größten Konfinement in der aktiven Schicht einer [0001]-orientierten GaN/AlGa_{0.9}N-Heterostruktur auf SiC mit verbesserter Wellenführung aus einer quasi-2dimensionalen Simulation der Wellenleiterstruktur. Für die aktive Schicht wird der mittlere Brechungsindex dargestellt.

[0001]-orientierten GaN/AlGa_N-Heterostrukturen ist natürlich auch auf die InGa_N/Ga_N-Strukturen anwendbar.

Zusammenfassend kann man sagen, dass die beiden hier zur Verfügung stehenden GaN/AlGa_N-Proben aufgrund ihrer strukturellen Unterschiede keinen experimentellen Vergleich der Gewinneigenschaften in Abhängigkeit von der kristallografischen Orientierung erlaubten. Die gezeigten Vorschläge zur Optimierung einer substratunabhängigen Wellenführung in den Proben können dies ermöglichen.

Ausblick

Die in dieser Arbeit durchgeführten optischen Untersuchungen an InGaN/GaN- und GaN/AlGaN-Heterostrukturen dienten zum Einen dem besseren Verständnis der Rekombinationsprozesse in GaN-basierten Quantengraben und zum Anderen der erstmaligen umfassenden Charakterisierung und Einschätzung einer $[1\bar{1}00]$ -orientierten Heterostruktur.

Mit der Untersuchung des Abklingverhaltens von InGaN/GaN-Quantengrabenstrukturen und der Frage nach einem generellen Zusammenhang zwischen Lebensdauer und Ladungsträgerdichte ist ein Weg verwendet worden, den Einfluss der Lokalisation von Exzitonen an Stöchiometrieschwankungen auf die Rekombinationseigenschaften der Quantengraben zu untersuchen. Es konnte eindeutig gezeigt werden, dass für eine Probe mit 3.1 nm Grabenbreite die Lokalisation wesentlich die Rekombinationsdynamik beeinflusst. Weiterführende Untersuchungen mit einer Vereinzelung der Anregungsimpulse würden auch bei langsamer abklingenden Proben (so bei Proben mit größeren Grabenbreiten) diese interessante Fragestellung untersuchen lassen. Die Aussagen in der Literatur, dass bei Quantengraben, die breiter als der Bohrradius sind, nur noch die internen Felder eine Bedeutung für die Rekombination haben, könnte mit einer solchen Untersuchung experimentell auf neuem Wege hinterfragt werden.

Die durchgeführte Charakterisierung der neuartigen $[1\bar{1}00]$ -Heterostruktur deutet auf das große Potenzial, dass in diesem „feldfreien“ GaN-Quantengrabensystem steckt. Die Gewinnsspektren zeigen, dass solche Strukturen auf γ -LiAlO₂ eine interessante Basis für optische Bauelemente wie Laserdioden bilden. Vor allem die Flachbandzustände in den Quantengraben sind eine hervorragende Ausgangsbedingung für die Entwicklung von Dioden mit blauer und ultravioletter Emission.

Für weitere Erkenntnisse über die $[1\bar{1}00]$ -orientierten Heterostrukturen ist ein direkter Vergleich mit konventionell $[0001]$ -orientierten Quantengraben ein wichtiger Weg. Da jedoch bei herkömmlichen GaN-Heterostrukturen auf 6H-SiC die optischen Eigenschaften des Substrates eine große Rolle auf die Rekombinationseigenschaften der Proben spielen, ist ein solcher Vergleich nur möglich, wenn die verwendeten Substrate keinen Einfluss auf die Rekombination in den Proben haben. Dies ist beispielsweise durch eine Abkopplung des Substrates durch Pufferschichten mit niedrigem Brechungsindex realisierbar.

Literaturverzeichnis

- [1] S. Nagahama, N. Iwasa, M. Senoh, T. Matsushita, Y. Sugimoto, H. Kiyoku, T. Kozaki, M. Sano, H. Matsumura, H. Umemoto, K. Chochi, and T. Mukai *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 39 Part 2, p. L647, 2000.
- [2] S. Nakamura, M. Senoh, S. Nagahama, T. Matsushita, H. Kiyoko, Y. Sugimoto, T. Kozaki, H. Umemoto, M. Sano, and T. Mukai *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 38 Part 2, p. L226, 1999.
- [3] I. Ichimura, F. Maeda, K. Osato, K. Yamamoto, and Y. Kasami *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 39 Part 1, p. 937, 2000.
- [4] J. v. Neumann *IEEE J. Quantum Electron.*, vol. 23, p. 659, 1987.
- [5] R. D. Dupuis *IEEE J. Quantum. Electron.*, vol. 23, p. 651, 1987.
- [6] J. N. Holonyak and S. F. Bevacqua *Appl. Phys. Lett.*, vol. 1, p. 82, 1962.
- [7] H. M. Manasevit *Appl. Phys. Lett.*, vol. 12, p. 156, 1968.
- [8] A. Y. Cho *J. Vac. Sci. Technol.*, vol. 8, No.5, p. S31, 1971.
- [9] Z. Alferov, V. Andreev, and D. G. et al. *Sov. Phys. Semicond.*, vol. 4, p. 1573, 1971.
- [10] I. Hayashi, M. Panish, P. Foy, and S. Sumski *Appl. Phys. Lett.*, vol. 17, p. 109, 1970.
- [11] J. Nishizawa, K. Itoh, Y. Okuno, and F. Sakurai *J. Appl. Phys.*, vol. 57, p. 2210, 1985.
- [12] M. A. Haase, J. Quin, J. M. DePuydt, and H. Cheng *Appl. Phys. Lett.*, vol. 59, p. 1272, 1991.
- [13] K. Koga and T. Yamaguchi *Crystal Growth and Charact.*, vol. 23, p. 127, 1991.
- [14] M. G. Craford *Circuits and Devices*, Sept. 1992.
- [15] H. Sugawara, K. Itaya, and G. Hatakoshi *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 33, p. 5784, 1994.
- [16] E. Tiede, M. Thimann, and K. Sensee *Chem. Berichte*, vol. 61, p. 1568, 1928.
- [17] W. C. Johnson, J. B. Parsons, and M. C. Crew *J. Phys. Chem.*, vol. 36, p. 2651, 1932.
- [18] R. Juza and E. Hahn *Z. Anorg. Allgem. Chem.*, vol. 234, p. 282, 1938.
- [19] H. P. Maruska and J. J. Tietjen *Appl. Phys. Lett.*, vol. 15, p. 327, 1969.

- [20] R. Dingle, K. L. Shaklee, R. F. Leheny, and R. B. Zetterstrom *Appl. Phys. Lett.*, vol. 19, p. 5, 1971.
- [21] J. I. Pankove, E. A. Miller, and J. E. Berkeyheiser *J. Luminescence*, vol. 5, p. 84, 1972.
- [22] H. Amano, N. Sawaki, I. Akasaki, and Y. Toyoda *Appl. Phys. Lett.*, vol. 48, p. 353, 1986.
- [23] H. Amano, I. Akasaki, T. Kozawa, K. Hiramatsu, N. Sawaki, K. Ikeda, and Y. Ishi *J. Lumin.*, vol. 40-41, p. 121, 1988.
- [24] H. Amano, M. Kito, K. Hiramatsu, N. Sawaki, and I. Akasaki *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 28, p. L2112, 1989.
- [25] S. Nakamura and G. Fasol, *The Blue Laser Diode*. Springer Verlag, Berlin Heidelberg New York, 1997.
- [26] S. Nakamura, M. Senoh, S. Nagahama, N. Iwasa, T. Matsushita, Y. Sugimoto, and H. Kiyoko *Appl. Phys. Lett.*, vol. 70, p. 868, 1997.
- [27] M. Kneissl, D. P. Bour, C. G. van der Walle, L. Romano, J. Northrup, R. M. Wood, M. Teepe, and N. M. Johnson *Appl. Phys. Lett.*, vol. 75, p. 581, 1999.
- [28] T. Kobayashi, F. Nakamura, K. Naganuma, T. Tojyo, H. Nakajima, T. Asatsuma, H. Kawai, and M. Ikeda *Electron. Lett.*, vol. 34, p. 1494, 1996.
- [29] A. Kuramata, S. Kubota, R. Soejima, K. Domen, K. Horino, and T. Tanahashi *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 37 Part 2, p. L1373, 1998.
- [30] M. Kuramoto, C. Sasaoki, Y. Hsianaga, A. Kimura, A. A. Yamaguchi, H. Sunakawa, N. Kuroda, M. Nido, A. Usui, and M. Mizuta *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 38 Part 2, p. L184, 1999.
- [31] S. Nakamura, M. Senoh, S. Nagahama, N. Iwasa, T. Matsushita, Y. Sugimoto, and H. Kiyoko *Appl. Phys. Lett.*, vol. 69, p. 4056, 1996.
- [32] S. Nagahama, T. Yanamoto, M. Sano, and T. Mukai *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 40 Part 2, p. L785, 2001.
- [33] S. Nagahama, T. Yanamoto, M. Sano, and T. Mukai *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 40 Part 1, p. 3075, 2001.
- [34] I. Akasaki and H. Amano *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 36 Part 1, p. 5393, 1997.
- [35] S. C. Jain, M. Willander, J. Narayan, and R. V. Overstraeten *J. Appl. Phys.*, vol. 87, p. 965, 2000.
- [36] *Landolt-Börnstein, New Series*, vol. III/17a, Springer Verlag, Berlin, 1982.
- [37] Übersichtsarbeiten zum Wachstum von Gruppe-III-Nitriden auf Si sind beispielsweise C. R. Abernathy, in *GaN and Related Materials*, Seite 11-51, herausgegeben von S. J. Pearton (Gordon and Breach, New York, 1997) und G. Popovici, H. Morkoc and S. N. Mohammad, in *Group III Nitride Semiconductor Compounds*, Seite 19-69, herausgegeben von B. Gil (Clarendon, Oxford, 1998).

- [38] L. Liu and J. H. Edgar *Mat. Sci. Eng.*, vol. R 37, p. 61, 2002.
- [39] F. A. Ponce *MRS Bull.*, vol. 22, p. 51, 1997.
- [40] E. S. Hellmann, Z. Liliental-Weber, and D. N. E. Buchanan *MRS Internet J. Nitride Semicond. Research*, vol. 2, Art. 30, 1997.
- [41] X. Ke, X. Jun, D. Peizhen, Z. Yongzong, Z. Guoqing, Q. Rongsheng, and F. Zujie *J. Cryst. Growth*, vol. 193, p. 127, 1998.
- [42] P. Waltereit, O. Brandt, A. Trampert, H. T. Grahn, J. Menniger, M. Ramsteiner, M. Reiche, and K. H. Ploog *Nature*, vol. 406, p. 865, 2000.
- [43] F. Bernardini and V. Fiorentini *Phys. Rev. B.*, vol. 57, p. R9427, 1998.
- [44] F. Bernardini, V. Fiorentini, and D. Vanderbilt *Phys. Rev. B.*, vol. 56, p. R10024, 1997.
- [45] R. Langer, J. Simon, V. Ortiz, N. T. Pelekanos, A. Barski, R. André, and M. Godlewski *Appl. Phys. Lett.*, vol. 74, p. 3827, 1999.
- [46] R. Cingolani, A. Botchkarev, H. Tang, H. Morkoç, G. Traetta, G. Coli, M. Lomascola, A. D. Carlo, and F. D. S. P. Lugli *Phys. Rev. B.*, vol. 61, p. 2711, 2000.
- [47] A. Hangleiter, J. S. Im, H. Kollmer, S. Heppel, J. Off, and F. Scholz *MRS Internet J. Nitride Semicond. Research*, vol. 3, Art. 15, 1998.
- [48] J. S. Im, H. Kollmer, J. Off, A. Sohmer, F. Scholz, and A. Hangleitner *Phys. Rev. B.*, vol. 57, p. R9435, 1998.
- [49] H. S. Kim, J. Y. Lin, H. X. Jiang, W. W. Chow, A. Botchkarev, and H. Morkoç *Appl. Phys. Lett.*, vol. 73, p. 3426, 1998.
- [50] M. Leroux, N. Grandjean, M. Laügt, J. Massies, B. Gil, P. Lefebvre, and P. Bigenwald *Phys. Rev. B.*, vol. 58, p. R13371, 1998.
- [51] P. Riblet, H. Hirayama, A. Kinoshita, A. Hirata, T. Sugano, and Y. Aoyagi *Appl. Phys. Lett.*, vol. 75, p. 2241, 1999.
- [52] S. Chichibu, T. Sota, K. Wada, O. Brandt, K. H. Ploog, S. P. DenBaars, and S. Nakamura *phys. stat. sol (a)*, vol. 183, p. 91, 2001.
- [53] S. Nakamura, M. Senoh, S. Nagahama, N. Iwasa, T. Matsushita, Y. Sugimoto, and H. Kiyoko *Appl. Phys. Lett.*, vol. 70, p. 2753, 1997.
- [54] Y. Narukawa, Y. Kawakami, S. Fujita, S. Fujita, and S. Nakamura *Phys. Rev. B.*, vol. 55, p. R1938, 1997.
- [55] P. Waltereit, O. Brandt, J. Ringling, and K. H. Ploog *Phys. Rev. B.*, vol. 64, p. 245305, 2001.
- [56] P. Lefebvre, J. A. Egger, B. Gil, H. Mathieu, N. Grandjean, M. Leroux, J. Massies, and P. Bigenwald *Phys. Rev. B.*, vol. 59, p. R15363, 1999.

- [57] A. Bonfiglio, M. Lomascolo, G. Traetta, R. Cingolani, A. D. Carlo, F. D. Sala, P. Lugli, A. Botchkarev, and H. Morkoç *J. Appl. Phys.*, vol. 87, p. 2289, 2000.
- [58] N. Grandjean, B. Damilano, S. Dalmaso, M. Leroux, M. Laügt, and J. Massies *J. Appl. Phys.*, vol. 86, p. 3714, 1999.
- [59] R. A. Hogg, C. E. Norman, A. J. Shields, M. Pepper, and N. Iizuka *Appl. Phys. Lett.*, vol. 76, p. 1428, 2000.
- [60] S. Chichibu, T. Azuhata, T. Sota, and S. Nakamura *Appl. Phys. Lett.*, vol. 69, p. 4188, 1996.
- [61] T. Kuroda, A. Takeuchi, and T. Sota *Appl. Phys. Lett.*, vol. 76, p. 3753, 2000.
- [62] F. D. Sala, A. D. Carlo, P. Lugli, F. Bernardini, V. Fiorentini, R. Scholz, and J. Jancu *Appl. Phys. Lett.*, vol. 74, p. 2002, 1999.
- [63] T. Takeuchi, S. Sota, M. Katsuragawa, M. Komori, H. Takeuchi, H. Amano, and I. Akasaki *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 36 Part 2, p. L382, 1997.
- [64] W. Ludwig, *Festkörperphysik*. Akademische Verlagsgesellschaft, Wiesbaden, 1978.
- [65] P. Waltereit, *Characterization of (Al,In,Ga)N heterostructures grown along polar and non-polar directions by plasma-assisted molecular beam epitaxy*. PhD thesis, Humboldt-Universität zu Berlin, 2001.
- [66] P. Yu and M. Cardona, *Fundamentals of semiconductors*. Springer-Verlag, Berlin Heidelberg New York, 1996.
- [67] W. C. O'Mara, R. B. Herring, and L. P. Hunt, *Handbook of semiconductor silicon technology*. Noyes Publications, New Jersey USA, 1990.
- [68] S.-H. Park *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 39 Part 1, p. 3478, 2000.
- [69] F. Bechstedt, U. Grosser, and J. Furthmüller *Phys. Rev. B.*, vol. 62, p. 8003, 2000.
- [70] F. Bernardini, V. Fiorentini, and D. Vanderbilt *Phys. Rev. B.*, vol. 63, p. 193201, 2001.
- [71] V. Fiorentini, F. Bernardini, F. D. Sala, A. D. Carlo, and P. Lugli *Phys. Rev. B.*, vol. 60, p. 8849, 1999.
- [72] J. E. Northrup and J. Neugebauer *Phys. Rev. B.*, vol. 53, p. R10477, 1996.
- [73] T. Takeuchi, H. Amano, and I. Akasaki *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 39 Part 1, p. 413, 2000.
- [74] I. Ho and G. B. Stringfellow *Appl. Phys. Lett.*, vol. 69, p. 2701, 1996.
- [75] D. Doppalapudi, S. N. Basu, K. F. L. Jr., and T. D. Moustakas *J. Appl. Phys.*, vol. 84, p. 1389, 1998.
- [76] Y.-H. Cho, J. J. Song, S. Keller, U. K. Mishra, and S. P. DenBaars *Appl. Phys. Lett.*, vol. 73, p. 3181, 1998.

- [77] J. E. Northrup, L. T. Romano, and J. Neugebauer *Appl. Phys. Lett.*, vol. 74, p. 2319, 1999.
- [78] S. Chichibu, T. Azuhata, T. Sota, and S. Nakamura *Appl. Phys. Lett.*, vol. 70, p. 2822, 1997.
- [79] E. I. Rashba *Sov. Phys. Semicond.*, vol. 8, p. 807, 1975.
- [80] R. Zimmermann, *Many-Particle Theory of Highly Excited Semiconductors*. TEUBNER-TEXTE zur Physik - Band 18, BSB Teubner Verlagsgesellschaft, Leipzig, 1987.
- [81] S. Schmitt-Rink, D. S. Chemla, and D. A. B. Miller *Advances in Physics.*, vol. 38, p. 89, 1989.
- [82] F. Binet, J. Y. Duboz, J. Off, and F. Scholz *Phys. Rev. B.*, vol. 60, p. 4715, 1999.
- [83] S. Bidnyk, J. B. Lam, B. D. Little, Y. H. Kwon, J. J. Song, G. E. Bulman, H. S. Kong, and T. J. Schmidt *Appl. Phys. Lett.*, vol. 75, p. 3905, 1999.
- [84] S. Bidnyk, T. J. Schmidt, B. D. Little, and J. J. Song *Appl. Phys. Lett.*, vol. 74, p. 1, 1999.
- [85] B. Mrozwicz, M. Bugajski, and W. Nakwaski, *Physics of Semiconductor Lasers*. North-Holland, Amsterdam, Oxford, New York, Tokyo, 1991.
- [86] H. Wenzel and H.-J. Wünsche, “QIP - A Quasi-2dimensional Semiconductor Laser Simulation Program,” 2000.
- [87] M. Ramsteiner and P. Waltereit. PDI Berlin.
- [88] P. Waltereit, O. Brandt, M. Ramsteiner, K. H. Ploog, R. Uecker, and P. Reiche *J. Cryst. Growth*, vol. 218, p. 143, 2000.
- [89] K. L. Shaklee and R. F. Leheny *Appl. Phys. Lett.*, vol. 18, p. 475, 1971.
- [90] O. Mayrock, H.-J. Wünsche, and F. Henneberger *Phys. Rev. B.*, vol. 62, p. 16870, 2000.
- [91] G. Snider, “1D Poisson/Schrödinger: A band diagram calculator.” <http://www.nd.edu/~gsnider/>.
- [92] O. Ambacher, M. Arzberger, D. Brunner, H. Angerer, F. Freudenberger, N. Esser, T. Wethkamp, K. Wilmers, W. Richter, and M. Stutzmann *MRS Internet J. Nitride Semicond. Research*, vol. 2, Art. 22, 1997.
- [93] *Landolt-Börnstein, New Series*, vol. III/7d2, Springer Verlag, Berlin, 1980.
- [94] W. J. Choyke and E. D. Palik, “Silicon Carbide (SiC),” in *Handbook of optical constants of solids*, Academic Press. Inc., 1985.
- [95] G. Martin, A. Botchkarev, A. Rockett, and H. Morkoç *Appl. Phys. Lett.*, vol. 68, p. 2541, 1996.
- [96] A. Rizzi, R. Lanthier, F. Monti, H. Lüth, F. D. Sala, A. D. Carlo, and P. Lugli *J. Vac. Sci. Technol.*, vol. B17, p. 1674, 1999.

- [97] J. J. Hopfield *J. Phys. Chem. Solids*, vol. 15, p. 97, 1959.
- [98] R. Dingle, D. D. Sell, S. E. Stokowski, and M. Ilegems *Phys. Rev. B.*, vol. 4, p. 1211, 1971.
- [99] K. Domen, K. Horino, A. Kumarata, and T. Tanshashi *Appl. Phys. Lett.*, vol. 71, p. 1996, 1997.
- [100] B. Gil and A. Alemu *Phys. Rev. B.*, vol. 56, p. 12446, 1997.
- [101] A. Niwa, T. Ohtoshi, and T. Kuroda *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 35 Part 2, p. L599, 1996.
- [102] P. T. Landsberg, *Recombination in semiconductors*. Cambridge University Press, 1991.
- [103] T. Deguchi, K. Sekiguchi, a. Nakamura, T. Sota, R. Matsuo, S. Chichibu, and S. Nakamura *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 38 Part 2, p. L914, 1999.
- [104] A. Hangleiter, D. Frankowsky, V. Härle, and F. Scholz *Mat. Sci. Eng.*, vol. B43, p. 201, 1997.
- [105] D. Frankowsky, F. Steuber, V. Härle, F. Scholz, and A. Hangleiter *Appl. Phys. Lett.*, vol. 68, p. 3746, 1996.
- [106] S. Hess, R. A. Taylor, and J. F. Ryan *Appl. Phys. Lett.*, vol. 73, p. 199, 1998.
- [107] G. Mohs, T. Aoki, R. Shimano, M. Kuwata-Gonokami, and S. Nakamura *Solid State Commun.*, vol. 108, p. 105, 1998.
- [108] P. Ramvall, Y. Aoyagi, A. Kuramata, P. Hacke, K. Domen, and K. Horino *Appl. Phys. Lett.*, vol. 76, p. 2994, 2000.
- [109] W. W. Chow, A. Knorr, and S. W. Koch *Appl. Phys. Lett.*, vol. 67, p. 754, 1995.
- [110] W. Fang and S. L. Chuang *Appl. Phys. Lett.*, vol. 67, p. 751, 1995.
- [111] S. Kamiyama, K. Ohnaka, M. Suzuki, and T. Uenoyama *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 34 Part 2, p. L821, 1995.
- [112] A. T. Meney and E. P. O'Reilly *Appl. Phys. Lett.*, vol. 67, p. 3013, 1995.
- [113] G. B. Ren and P. Blood *Phys. Rev. B.*, vol. 60, p. 16675, 1999.
- [114] M. Nido *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 34 Part 2, p. L1513, 1995.
- [115] M. Suzuki, T. Uenoyama, and A. Yanase *Phys. Rev. B.*, vol. 52, p. 8132, 1995.
- [116] M. Suzuki and T. Uenoyama *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 35 Part 1, p. 1420, 1996.
- [117] K. Domen, K. Horino, A. Kumarata, and T. Tanshashi *Appl. Phys. Lett.*, vol. 70, p. 987, 1997.
- [118] Y. C. Yeo, T. C. Chong, and M. F. Li *IEEE J. Quantum Electron.*, vol. 34, p. 1270, 1998.
- [119] S.-H. Park *Appl. Phys. Lett.*, vol. 77, p. 4095, 2000.

- [120] D. A. Cohen, T. Margalith, A. C. Abare, M. P. Mack, L. A. Coldren, S. P. DenBaars, and D. R. Clarke *Appl. Phys. Lett.*, vol. 72, p. 3267, 1998.
- [121] A. Trampert. PDI Berlin.
- [122] J. Han, K. E. Waldrip, S. R. Lee, J. J. Figiel, S. J. Hearne, G. A. Petersen, and S. M. Myers *Appl. Phys. Lett.*, vol. 78, p. 67, 2001.
- [123] W. W. Chow, A. F. Wright, and J. S. Nelson *Appl. Phys. Lett.*, vol. 68, p. 296, 1996.
- [124] S. Nakamura, M. Senoh, S. Nagahama, N. Iwasa, T. Matsushita, Y. Sugimoto, and H. Kiyoko *Appl. Phys. Lett.*, vol. 69, p. 1568, 1996.
- [125] O. Gluschenkov, J. M. Myong, K. H. Shim, K. Kim, Z. G. Figen, J. Gao, and J. G. Eden *Appl. Phys. Lett.*, vol. 70, p. 811, 1997.
- [126] W. W. Chow, S. W. Koch, and M. Sargent III, *Semiconductor-Laser Physics*. Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 1994.
- [127] S. J. Hearne, J. Han, S. R. Lee, J. A. Floro, D. M. Follstaedt, E. Chason, and I. S. T. Tsong *Appl. Phys. Lett.*, vol. 76, p. 1534, 2000.

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei all jenen bedanken, ohne die diese Arbeit in der Form nicht entstanden wäre.

In erster Linie danke ich Herrn Prof. Dr. Fritz Henneberger für seine große Offenheit bei der Aufnahme eines FH-Absolventen in die Arbeitsgruppe Photonik. Seine stete Bereitschaft zur Diskussion und seine zahlreichen Anregungen und kritischen Ratschläge waren eine wichtige Unterstützung für mich.

Mein besonderer Dank gebührt Herrn Dr. Joachim Puls, der den überwiegenden Teil meiner Promotionszeit als Betreuer begleitet hat. Seine überragende Kompetenz in experimentellen und theoretischen Fragen der Physik waren eine wichtige Erfahrung für mich, die vielen Diskussionen eine große Hilfe und Anregung. Seine kritischen Hinweise haben sehr zum Wachsen dieser Arbeit beigetragen.

Dr. Patrick Waltereit und Dr. Oliver Brandt vom Paul-Drude-Institut Berlin danke ich für die angenehme und erfolgreiche Zusammenarbeit, die großzügige Bereitstellung der Proben und die vielen fruchtbaren Diskussionen.

Dr. Martin Lowisch danke ich für seine kompetente und freundliche Unterstützung als Betreuer meiner Arbeit im ersten Jahr.

Dr. Hans-Jürgen Wünsche sei herzlichst gedankt für die vielen Anregungen, Diskussionen und insbesondere für die Unterstützung bei den Simulationsrechnungen zur Wellenleitung.

Dr. Oliver Mayrock gilt mein Dank für die interessanten Gespräche und die anregende Zusammenarbeit.

Stefan Hansel danke ich für die technische Unterstützung bei der Messung der Intensitätsabhängigkeiten von der Ladungsträgerdichte.

Timur Flissikowski möchte ich für die sehr angenehme Arbeitsatmosphäre und seine stete Hilfsbereitschaft danken.

Allen bisher nicht genannten Photonikern, vor allem Sabine Czaja, sei herzlichst für das angenehme Arbeitsklima und die große Kooperationsbereitschaft gedankt.

Einen wichtigen Anteil am Gelingen dieser Arbeit hat meine Freundin Anke, die mit viel Gefühl und Geduld die private Seite der Promotionszeit verschönert hat und eine große Stütze für mich ist.

Abschließend möchte ich ganz herzlichst Herrn Prof. Dr. Frank Fink danken, der mich ermutigt hat, nach meinem Diplom an der FHTW, den Weg der Promotion zu gehen.

Vielen Dank!

Publikationen

- B. Rau, J. Puls, F. Henneberger, P. Waltereit, O. Brandt, M. Ramsteiner, and K. H. Ploog,
„In-plane polarization anisotropy of the spontaneous emission of M-plane GaN/(Al,Ga)N quantum wells“
Appl. Phys. Lett. 77 (21), 3343 (2000)
- B. Rau, P. Waltereit, O. Brandt, A. Trampert, K. H. Ploog, J. Puls and F. Henneberger,
„Comparative study of the spontaneous and stimulated emission of M-plane and C-plane GaN/(Al,Ga)N quantum wells“
Physics and Simulation of Optoelectronic Devices IX, SPIE Proceedings 4283, 96 (2001)
(Invited paper)
- D. Wruck, A. Klimakow, B. Rau, and F. Henneberger,
„Study of the environment of Er in ZnSe using extended x-ray absorption fine structure and optical spectroscopy“
Semicond. Sci. Technol. 16, 885 (2001)

Konferenzteilnahme

- | | |
|-----------|---|
| März 2000 | „3rd ISBLLED 2000“, in Berlin-Zeuthen, Deutschland |
| Jan. 2001 | „Photonics West – Optoelectronics 2001“ in San Jose, CA, USA
Physics and Simulation of Optoelectronic Devices IX,
SPIE (Invited talk) |

Lebenslauf

Name: Björn Rau
geboren: 17.06.1972 in Berlin
Adresse: Orionstraße 4
12435 Berlin
Tel.: 030 / 534 56 46, e-mail: bjoern.rau@hmi.de

6. September 2002

- seit Okt. 2001 Hahn-Meitner-Institut Berlin,
Abteilung Silizium-Photovoltaik
- Aug. 1998 – April 2001 **Promotion** an der
Humboldt-Universität zu Berlin, Institut für Physik
in der Arbeitsgruppe Prof. Dr. F. Henneberger,
„Physikalische Grundlagen der Photonik“
8. Juli 1998 Feststellungsprüfung für das Promotionsgebiet Physik
am Institut für Physik der Humboldt-Universität zu Berlin
„mit Erfolg bestanden“
- März 1997 – März 1998 Zivildienst als Nationalparkwacht im Niedersächsischen Wattenmeer
im Nieders. Landesamt für Wasserwirtschaft und Küstenschutz,
Norden (NLWK) - Außenstelle Norderney
- Okt. 1992 – Jan. 1997 **Diplom** Physikalische Technik
mit Studienschwerpunkt Physikalische Messtechnik
an der Fachhochschule für Technik und Wirtschaft, Berlin
Diplom „sehr gut“
- April 1996 – Okt. 1996 **Diplomsemester**
im Physikalischen Institut der Universität Würzburg,
in der Arbeitsgruppe Prof. Dr. G. Landwehr,
„Experimentelle Physik III“
- Okt. 1994 – Jan. 1995 **praktisches Studiensemester**
im LaserLabor Adlershof e.V., Berlin
- Sept. 1989 – Juli 1992 Ausbildung zum
Staatlich geprüften Physikalisch-technischen Assistenten
mit Fachhochschulreife
im Staatlichen berufbild. Schulzentrum Jena-Göschwitz (Thüringen)
- Feb. 1992 – Juni 1992 **Abschlusspraktikum** zum Physikalisch-technischen Assistenten
an der Tschechischen Hochschule für Technik Prag, (CVUT Praha)
- Jan. 1991 – Feb. 1991 **Betriebspraktikum** im Rahmen der Ausbildung zum
Physikalisch-technischen Assistenten
im Landesamt für Mess- und Eichwesen Brandenburg
- Sept. 1979 – Juli 1989 3. POS Berlin-Treptow

Selbstständigkeitserklärung

Hiermit erkläre ich, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig ohne fremde Hilfe verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel verwendet habe.

Björn Rau

Berlin, den 6. September 2002